

Université Fédérale



Toulouse Midi-Pyrénées

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)

---

**Présentée et soutenue par :**

**Hélène PEIRO**

**le** vendredi 12 janvier 2018

**Titre :**

Assimilation des observations satellitaires de l'interféromètre atmosphérique de sondage infrarouge (IASI) dans un modèle de chimie-transport pour des réanalyses d'ozone à l'échelle globale.

---

**École doctorale et discipline ou spécialité :**

ED SDU2E : Océan, Atmosphère et Surfaces Continentales

**Unité de recherche :**

CERFACS/CNRS (CECI UMR 5318), Equipe Aviation et Environnement

**Directeur/trice(s) de Thèse :**

Daniel CARIOLLE et Emanuele EMILI

**Jury :**

Cathy CLERBAUX  
Sébastien MASSART  
Slimane BEKKI

(Rapporteurs)

# THÈSE

En vue de l'obtention du  
**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE  
TOULOUSE**

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

---

---

Présentée et soutenue le 12/01/2018 par :  
**HÉLÈNE PEIRO**

**Assimilation des observations satellitaires de  
l'Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge  
(IASI) dans un modèle de chimie-transport pour des  
réanalyses d'ozone à l'échelle globale**

---

---

## JURY

JEAN-LUC ATTIE	LA	Président du Jury
VIRGINIE MARÉCAL	CNRM-GAME	Examineur
CATHY CLERBAUX	CNRS - LATMOS/IPSL	Rapporteur
SÉBASTIEN MASSART	CEPMNT	Rapporteur
SLIMANE BEKKI	LATMOS	Rapporteur
DANIEL CARIOLLE	CNRS/CERFACS	Directeur de thèse
EMANUELE EMILI	CNRS/CERFACS	Co-directeur de thèse, Invité

---

### École doctorale et spécialité :

*SDU2E : Océan, Atmosphère, Climat*

### Unité de Recherche :

*CERFACS/CNRS (CECI UMR 5318), Equipe Aviation et Environnement*

### Directeur(s) de Thèse :

*Daniel CARIOLLE et Emanuele EMILI*

### Rapporteurs :

*Cathy CLERBAUX, Sébastien MASSART et Slimane BEKKI*

Assimilation des observations satellitaires de  
l'Interféromètre Atmosphérique de Sondage  
Infrarouge (IASI) dans un modèle de  
chimie-transport pour des réanalyses d'ozone à  
l'échelle globale

Hélène PEIRO

March 12, 2018





**AUTEUR :** Hélène PEIRO

**TITRE :** Assimilation des observations de l'Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge (IASI) pour les réanalyses d'ozone à l'échelle globale

**DIRECTEUR DE THESE :** Daniel CARIOLLE et Emanuele EMILI

**LIEU ET DATE DE SOUTENANCE :** Au CERFACS, 42 avenue Gaspard Coriolis, Toulouse 31500, le 12 janvier 2018

---

## RESUMÉ

L'impact sur le climat et sur la qualité de l'air des gaz émis par les activités humaines a de fortes retombées sociales et économiques. L'ozone ( $O_3$ ) troposphérique est produit à partir des polluants primaires comme les oxydes d'azote. Il est le troisième gaz par importance dans l'effet de serre après le dioxyde de carbone et le méthane, et il est l'un des polluants principaux pour ses effets oxydants sur les tissus organiques.

Pour répondre au besoin de mesure continue de la concentration d' $O_3$  plusieurs satellites emportent des sondeurs capables de mesurer leur signal dans les domaines ultraviolet, visible ou infrarouge du rayonnement terrestre. Le CNES développe notamment le sondeur infrarouge IASI à bord des satellites météorologiques polaires METOP. IASI, en orbite depuis de nombreuses années, permet d'estimer la concentration de certains gaz atmosphériques, notamment l' $O_3$ , avec une couverture spatio-temporelle jamais atteinte jusqu'à présent. Chaque jour IASI mesure le spectre infrarouge de l'atmosphère entre 650 et 2700 nm avec une résolution horizontale de 12 km, ce qui fait un volume de données géolocalisées de plusieurs dizaines de gigaoctets par jour. Ces observations constituent un jeu de données idéal pour la validation des modèles de chimie-transport (CTM) à la base des systèmes de surveillance et de prévision de la qualité de l'air. Ces modèles peuvent prendre en compte les observations satellitaires par une procédure mathématique appelée 'assimilation de données'. Cette technique permet de compléter l'information parfois parcellaire des satellites (par exemple à cause de la présence des nuages ou durant la nuit pour les capteurs UV-visible) et d'obtenir des champs 3D globaux des concentrations de certaines espèces chimiques avec une fréquence horaire. Dans ce contexte, il est très important de développer des algorithmes fiables et efficaces pour assimiler les données IASI dans les CTM. A cette fin, l'UMR/CECI (CERFACS) développe en collaboration avec le CNRM/Météo-France un outil d'assimilation (VALENTINA) pour le CTM MOCAGE ayant des applications à l'échelle globale ou régionale pour l'étude du climat ou de la qualité de l'air, notamment dans le cadre du projet européen Copernicus sur la composition de l'atmosphère (CAMS). Il collabore également avec le Laboratoire d'Aérodynamique, qui développe depuis plusieurs années l'algorithme SOFRID de restitution des profils verticaux d' $O_3$  IASI basé sur le code de transfert radiatif RTTOV.

Le travail de cette thèse concerne la mise au point et la production d'analyses d' $O_3$  troposphérique tridimensionnelles par l'assimilation d'observations satellitaires (MLS, IASI) dans le CTM MOCAGE. L'objectif principal est de constituer une nouvelle base de données pour l'étude de la variabilité de l'ozone de l'échelle journalière à celle décennale. On démontre ainsi la capacité des analyses utilisant les données IASI à reproduire la réponse de l' $O_3$  troposphérique à l'ENSO (El Niño Southern Oscillation) aux basses latitudes, apportant notamment des informations nouvelles sur la distribution verticale des anomalies associées. Une large part de ce travail a de plus consisté à analyser les biais entre les analyses et les données de sondages indépendantes. Une des raisons expliquant ces biais

pourrait être l'utilisation d'a-priori et de covariances d'erreurs climatologiques fortement biaisés (notamment au niveau de la tropopause) dans la procédure d'inversion des produits d'O<sub>3</sub> de IASI. Une seconde partie de la thèse a donc consisté à mettre en place une méthode permettant de prescrire des a-priori plus proches des situations réelles améliorant ainsi les profils d'O<sub>3</sub> restitués. En conclusion cette thèse constitue une avancée significative vers l'amélioration des produits d'O<sub>3</sub> troposphérique issus de l'instrument IASI, permettant d'envisager un suivi à long terme que le caractère opérationnel des satellites METOP facilitera.

---

**MOTS-CLES** chimie atmosphérique, ozone, sondeur IASI, télédétections, assimilation de données variationnelle, restitutions de données satellitaires.

---

**DISCIPLINE ADMINISTRATIVE** Océan, Atmosphère, Climat

---

**INTITULE ET ADRESSE DE L'U.F.R. OU DU LABORATOIRE :** CNRS-CERFACS, UMR CECI 5318, Équipe Aviation et Environnement au Centre Européen de Recherche en Formation Avancée de Calcul Scientifique.



# REMERCIEMENTS

Je voudrais commencer par remercier mon Jury de thèse, pour avoir accepté de lire ce manuscrit et pour la pertinence de leurs remarques et conseils.

Je tiens également à remercier mes directeurs de thèse, pour m’avoir acceptée dans leur équipe comme doctorante et m’avoir donné l’opportunité de travailler sur ce sujet passionnant. Je leur suis reconnaissante de la grande confiance qu’ils m’ont accordée.

Je remercie également tous ceux avec qui j’ai pu travailler. Merci à Gilles Forêt pour être venu à Toulouse et avoir participé à mon conseil de thèse. Je remercie également Eric Le Flochmoën et Brice Barret du Laboratoire d’Aérodynamique, sans qui les travaux sur les profils a-priori de SOFRID n’auraient pas pu aboutir. Merci également à Andrea ainsi que mon ancien co-bureau, Boyan, pour m’avoir aidé sur l’utilisation du modèle MOCAGE.

Je remercie les membres de l’équipe Aviation et Environnement du CERFACS ainsi que les autres équipes du CERFACS.

Je remercie ensuite tous ceux qui m’ont permis de passer trois ans de vie agréable au sein de Météo France.

Merci à Laure du CERFACS pour la mise à disposition du vélo vert et les nombreux mails envoyés pour l’emprunter. Ce vélo m’a permis quelquefois de m’évader dans la nature Toulousaine pendant ma pause du midi.

Merci aux anciens doctorants du CERFACS : Adèle et Alexis (pour m’avoir montré comment fonctionnait le CERFACS et la vie de thésard), Abdullah (pour avoir bien rigolé), Franchine et Aisha (merci pour toutes les pauses café et repas qui m’ont fait évader de la thèse), Carlos, César, Romain et Majd. Mais également aux doctorants qui finiront bientôt : Oliver, Thomas (encore merci pour le coup de main aux vendanges), Dario, Mélissa et tous les autres avec qui j’ai joué au foot, fais quelques soirées et discuté. Sans oublier les thésards du CNRM avec qui j’ai passé des discussions inoubliables au repas “Eurest” du midi (avec Xavier, Quentin, Maxime, ...) et les innombrables parties de ping-pong (avec Iris, César, Yann, Maxence, ...) qui m’ont permis de bien me défouler !! Puis merci aux post-docs : à Géraldine (pour nos échanges de recettes et ses conseils de post-doc) et Sibon (merci pour nos discussions, repas et pour m’avoir raconté quelques coutumes chinoises).

Je remercie également les élèves de l’ENM avec qui j’ai bien rigolé : Thibault (j’ai enfin fini ma longue ligne !), Thomas, Tekky (Aloha), Pascal, Ulrick, Yoann (pour ses encouragements) et tout les autres avec qui j’ai passé de bons moments.

Un grand merci à Claire pour les supers moments passés au foyer (à cuisiner), pour les pauses thés et pour les délicieux repas au « tahitien ».

Merci à mes amis que je connais depuis longtemps et qui m'ont soutenus durant mes études et ma thèse. Un énorme merci à Margaud (on va boire un thé pour fêter ça ?) et à Loïc (courage c'est bientôt fini pour toi aussi !). Merci également à Yoann (encore merci pour le stéthoscope), Laura (Hola), ...

Je ne peux pas citer tous les noms mais merci à vous tous, vous que j'ai coutoyé et qui m'avez apporté le sourire !

Enfin, je termine ces remerciements pour ma famille. Merci à mes tantes, oncles, cousins et cousines qui même loin (de Paris, d'Amiens, du Havre, du Gers et de Toulouse) m'ont également soutenue.

Merci à ma soeur, Claire, où depuis Limoges elle m'encourageait. Elle a toujours été là pour moi, et je lui en suis très reconnaissante. Merci à mes parents pour être toujours là quand il le faut, pour leurs encouragements et leur soutien.

Merci à tous pour votre joie de vivre.



# Table des Matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1 Composition de l'atmosphère . . . . .	1
2 Structure verticale de l'atmosphère terrestre . . . . .	3
3 L'ozone troposphérique : chimie et transport . . . . .	4
4 Objectifs et plan de la thèse . . . . .	7
 <b>1 L'ozone troposphérique : chimie et transport</b>	 <b>11</b>
1.1 Production et destruction chimique de l'ozone . . . . .	12
1.2 Echanges stratosphère-troposphère . . . . .	17
1.3 Dynamique troposphérique aux tropiques . . . . .	18
1.3.1 Définition et spécificités des régions tropicales . . . . .	18
1.3.2 La dynamique atmosphérique tropicale . . . . .	20
1.4 Variabilité de l'ozone dans le Pacifique influencée par le forçage dynamique de El Niño Southern Oscillation (ENSO) . . . . .	22
 <b>2 Le modèle de chimie transport MOCAGE</b>	 <b>26</b>
2.1 Généralités et caractéristiques de MOCAGE . . . . .	28
2.2 Le schéma de CARIOLLE . . . . .	33
 <b>3 Les satellites : de la technique de mesure vers l'algorithme de restitution</b>	 <b>36</b>
3.1 Télédétection spatiale . . . . .	38
3.1.1 Les sources de rayonnement . . . . .	38
3.1.2 La théorie du transfert radiatif . . . . .	39
3.1.3 Les codes de transfert radiatif : le modèle RTTOV . . . . .	42
3.1.4 Les instruments spatiaux . . . . .	42
3.2 Instruments spatiaux utilisés . . . . .	44
3.2.1 À bord du satellite AURA . . . . .	44
3.2.2 À bord du satellite Metop-A . . . . .	47
3.3 Les méthodes d'inversion . . . . .	52
3.3.1 Le problème inverse . . . . .	52
3.3.2 Le profil a-priori . . . . .	52
3.3.3 L'estimation optimale . . . . .	52
3.3.4 Les fonctions de lissage ou Averaging Kernels . . . . .	54
3.3.5 Les degrés de liberté . . . . .	55
3.3.6 Le logiciel d'inversion SOFRID . . . . .	55

<b>4</b>	<b>L'assimilation de données</b>	<b>60</b>
4.1	Concepts et formalisme . . . . .	63
4.2	Les méthodes variationnelles . . . . .	66
4.3	Caractéristiques de l'algorithme d'assimilation de MOCAGE . . . . .	69
<b>5</b>	<b>Description des simulations et validation globale</b>	<b>73</b>
5.1	Introduction . . . . .	74
5.2	Méthodologie et présentation des simulations . . . . .	75
5.2.1	Le modèle direct . . . . .	76
5.2.2	Les analyses . . . . .	76
5.3	Evolution de la colonne d'ozone troposphérique sur la période 2008-2013 . . . . .	83
5.4	Conclusions . . . . .	89
<b>6</b>	<b>Assimilation pluriannuelle des restitutions d'ozone IASI et MLS : variabilité de l'ozone troposphérique sur les tropiques en réponse à l'ENSO</b>	<b>92</b>
6.1	Résumé de l'article . . . . .	93
6.2	Article - Multi-year assimilation of IASI and MLS ozone retrievals : variability of tropospheric ozone over the tropics in response to ENSO.	95
6.3	Introduction . . . . .	95
6.4	Methodology . . . . .	99
6.4.1	Assimilated observations . . . . .	99
6.4.2	Validation observations . . . . .	100
6.4.3	Analyses . . . . .	102
6.5	Results . . . . .	103
6.5.1	Validation with the ozonesoundings . . . . .	104
6.5.2	Temporal and spatial variability of ozone during ENSO . . . . .	108
6.6	Summary and conclusion . . . . .	116
6.7	Conclusion de l'article . . . . .	126
<b>7</b>	<b>Développement d'un a-priori dynamique et améliorations des restitutions d'ozone IASI</b>	<b>129</b>
7.1	Introduction . . . . .	130
7.2	Les observations pour l'évaluation . . . . .	132
7.3	Vers la mise en place des a-priori et matrices de covariance d'erreur dynamiques . . . . .	133
7.3.1	Détermination de l'a-priori dynamique . . . . .	134
7.3.2	Détermination de la matrice de covariance d'erreur d'ébauche dynamique . . . . .	134
7.3.3	Validation des restitutions dynamiques contre les quatre sondes : Svalbard, Suisse, Suriname, et Nouvelle-Zélande . . . . .	137
7.4	Validation globale avec les sondes sur une période de deux ans . . . . .	143
7.5	Validation concernant la variabilité d'ozone lors d'un évènement ENSO	147
7.6	Conclusion . . . . .	150
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>153</b>



Bibliographie	157
<b>ANNEXES</b>	<b>182</b>
A L'équation du transfert radiatif	182
B Niveaux de données IASI	185
C Longueur de corrélation verticale d'erreur d'ébauche variable sur la verticale.	187
D Validation concernant la variabilité d'ozone lors d'un évènement ENSO : comparaison avec l'analyse MLS-a	189



# Introduction générale

Cette introduction fait un rappel des bases des caractéristiques de l'atmosphère, nécessaire pour contextualiser notre étude avec un accent particulier sur l'ozone troposphérique, sa variabilité et sa distribution spatiale.

## 1 Composition de l'atmosphère

L'atmosphère est définie comme étant la couche où sont retenus, par force gravitationnelle, tous les gaz et particules en suspension. Les molécules des gaz atmosphériques sont donc, par leur forte densité, principalement situées près du sol. La pression au sol est en moyenne de 1000 hPa et diminue quasi-exponentiellement avec l'altitude.

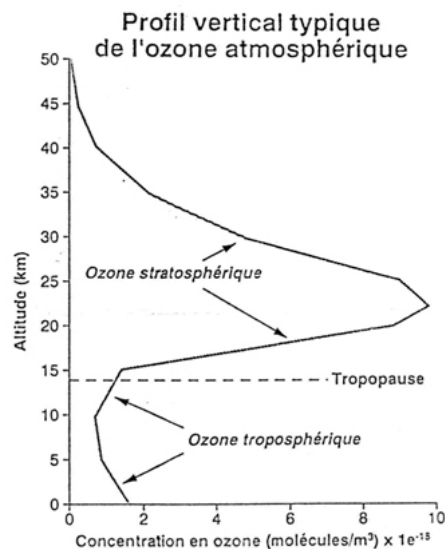


Figure 1: Profil vertical de la concentration d'ozone atmosphérique. (*Education.meteofrance.fr*).

Les deux principaux composants présents dans l'atmosphère sont l'azote et l'oxygène (tableau 1). Ces deux molécules diatomiques représentent 98.9 % de la masse atmosphérique. L'argon, le gaz carbonique et d'autres gaz en trace comme l'ozone sont également présents dans l'atmosphère en plus faible quantité. D'autres composants sont également présents, tels que les aérosols naturels (provenant des érosions, des éruptions volcaniques, ...), les aérosols anthropiques (feux de végétation, pollution

CONSTITUANT	Formule	Rapport de mélange dans l'air sec	Origine	Durée de vie
Vapeur d'eau	H <sub>2</sub> O	Variable	Processus physiques	6-15 jours
Azote	N <sub>2</sub>	78.084 %	Biologique	15.10 <sup>6</sup> ans
Oxygène	O <sub>2</sub>	20.948 %	Biologique	8.10 <sup>3</sup> ans
Argon	Ar	0.934 %	Inerte	infini
Dioxyde de carbone	CO <sub>2</sub>	408 ppmv	Combustions, océan, biosphère	15 - 120 ans
Néon	Ne	18.18 ppmv	Inerte	infini
Hélium	He	5.24 ppmv	Inerte	infini
Méthane	CH <sub>4</sub>	1.8 ppmv	Biogénique, combustions et anthropique	9 ans
Hydrogène	H <sub>2</sub>	0.55 ppmv	Biogénique, anthropique et photochimique	10 ans
Ozone (troposphérique)	O <sub>3</sub>	10 - 500 ppbv	Photochimique	1 à 2 mois
Ozone (stratosphérique)	O <sub>3</sub>	0.5 - 10 ppmv	Photochimique	1 à 2 ans
Dioxyde d'azote	NO <sub>2</sub>	0.1 - 100 ppbv	Photochimique	jours
Radical peroxyde	HO <sub>2</sub>	0.1 - 10 ppbv	Photochimique	minutes
Radical hydroxyde	OH	0.1 - 10 pptv	Photochimique	secondes

Table 1: Composition de l'air sec dont les principaux gaz sont indiqués dans la colonne de gauche avec leur formule chimique, de même sont indiqués leur rapport de mélange dans l'air sec, leur principale origine et enfin leur temps de vie caractéristique dans l'atmosphère. La fraction molaire (nommée aussi comme "le rapport de mélange" ou le "volume mixing ratio" en anglais) correspond au rapport entre le nombre de moles ou de molécules d'un constituant avec le nombre de moles ou de molécules d'air sec (correspondant à la somme de tous les constituants de ce tableau). Elle est exprimée en parties par million (ppmv, 10<sup>-6</sup>), parties par milliard (ppbv, 10<sup>-9</sup>) ou partie par trillion (pptv, 10<sup>-12</sup>).

industrielle, ...), et la vapeur d'eau (primordiale pour son effet de serre, le cycle de l'eau, et le transport d'énergie).

Bien que certains gaz soient présents en très faibles quantités dans l'atmosphère, d'où leur noms de "gaz trace", ils jouent un rôle important pour la biodiversité

terrestre. L’ozone situé entre environ 10 km et 50 km (couche nommée stratosphère) notamment est primordial pour la vie terrestre, dû à sa capacité à absorber une grande partie des rayons ultraviolets solaires, rayonnement dangereux pour tous les êtres vivants. Cet ozone nommé ozone stratosphérique représente 90 % de la colonne totale d’ozone (figure 1). Les 10 % restant se trouvent en concentrations plus faibles dans la couche inférieure nommée troposphère (figure 1). Cet ozone est produit, en partie, par l’activité humaine et contrairement à l’ozone stratosphérique qui est bénéfique, l’ozone à la surface de la Terre (nommé ozone troposphérique) peut être nocif pour les êtres vivants si sa concentration est trop importante. La section 3 de cette partie en rappelle les principaux enjeux.

## 2 Structure verticale de l’atmosphère terrestre

Dans l’atmosphère il existe différentes couches, toutes caractérisées par leur profil thermique vertical (figure 2), énumérées ci-dessous.

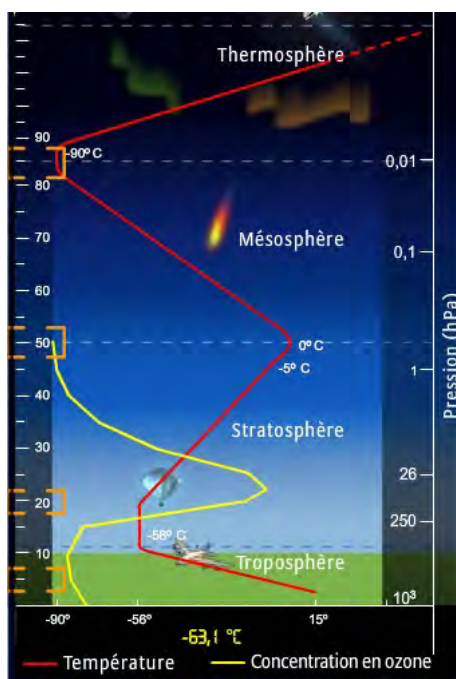


Figure 2: Profil vertical de l’atmosphère du sol jusqu’à 100 km d’altitude. Les profils de la concentration en ozone sont tracés en jaune et la température atmosphérique en degrés celsius est en rouge (*Education.meteofrance.fr*).

### La troposphère

Il s’agit de la première couche proche du sol, celle qui nous entoure. Son épaisseur varie selon les latitudes, allant de 6 km à 7 km au niveau des pôles, de 11 km aux latitudes tempérées et de 18 km environ à l’équateur. Elle est plus épaisse aux tropiques et à l’équateur due à une plus forte convection (mouvements verticaux atmosphériques importants). Une forte concentration de vapeur d’eau se

situé dans cette couche atmosphérique, responsable majoritairement des phénomènes météorologiques. Il est à noter qu'il y a dans cette couche une décroissance quasi continue de la température avec l'altitude d'environ 6 K/km (figure 2). En effet, la principale source de chaleur pour la troposphère est le sol, qui réchauffé par le soleil, libère ensuite la chaleur emmagasinée. La limite supérieure à la troposphère est la tropopause. La troposphère peut être séparée en deux couches internes et bien distinctes :

- La couche limite atmosphérique, là où le sol (terre et océan) favorise les frottements ralentissant le déplacement de l'air et induisant un brassage des gaz par turbulence ;
- et la troposphère libre, là où le frottement devient négligeable et où l'influence des processus de surface tend à décroître.

### La stratosphère

Comprise entre la tropopause et environ 50 km, elle est caractérisée par une augmentation de la température, d'abord faible puis assez conséquente à partir de 30 km (figure 2). Cette augmentation de température est le résultat de l'absorption du rayonnement ultraviolet par l'ozone. Cette couche est très stable, avec un gradient positif vertical de la température qui permet d'inhiber tout développement de nuages convectifs troposphériques.

### La mésosphère

Cette couche est comprise entre environ 50 km et 85 km où la faible présence de dioxygène empêche la formation d'ozone, diminuant ainsi rapidement la température avec l'altitude. Le gradient vertical de la température devient alors négatif. Cette baisse de température cesse au niveau de la mésopause (couche supérieure de la mésosphère), avec des températures comprises de -120 °C à -50 °C.

Au dessus de la mésosphère se trouve la thermosphère et l'exosphère. Ces couches sont très peu denses et ne seront pas prises en compte pour notre étude.

## 3 L'ozone troposphérique : chimie et transport

L'ozone a été découvert pour la première fois par C.F. Schoenbein au milieu du 19<sup>ème</sup> siècle [Schoenbein, 1840]. C'est la présence d'une odeur particulière dans son laboratoire qui suggéra l'existence d'un gaz (en grec, sentir se dit *ozein*).

Dans la troposphère, l'ozone est connu comme étant un polluant et le quatrième gaz à effet de serre après la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone et le méthane (ou selon certaines études le N<sub>2</sub>O). L'ozone n'est pas directement émis par les activités humaines. Il est formé par production photochimique faisant intervenir des gaz traces tels que des composés carbonés (CO, CH<sub>4</sub>, hydrocarbures), des composés azotés (oxydes d'azote : NO<sub>x</sub>) et des Composés Organiques Volatils (COV). Ces précurseurs d'ozone sont émis dans l'atmosphère par la végétation, les sols et les processus de combustion (biomasse, fossile). Il est également formé par les éclairs

en de très petites quantités. Les sources et les puits de l’ozone troposphérique seront détaillés dans le chapitre 1.

Mais il est essentiel de se demander en premier lieu : quels sont les effets de ce gaz nocif et pourquoi faut-il s’y intéresser ?

L’ozone joue un rôle fondamental dans la chimie atmosphérique car il contrôle la concentration du radical <sup>1</sup> hydroxyle OH (l’agent oxydant le plus important de la troposphère). Par conséquent, l’ozone influence la capacité oxydante de l’atmosphère, c’est-à-dire la capacité à ”nettoyer“ la basse couche de l’atmosphère en réduisant la quantité de gaz réactifs tels que le CO et les COV. L’ozone est lui-même un oxydant : en forte concentration, il a des effets nocifs pour les êtres vivants et la biosphère.

L’ozone troposphérique a de plus un effet indirect sur l’effet de serre et donc le climat. L’ozone, via son contrôle du radical OH, agit sur la durée de vie de gaz à effet de serre tel que le CH<sub>4</sub>.

### Effets sur la santé et l’agriculture

Nous considérons en général que les plus grandes quantités de polluants se concentrent dans les villes (particules fines, oxydes d’azote, CO<sub>2</sub>, ...), et que les campagnes sont moins affectées. Pourtant, et contrairement aux idées reçues, ce n’est pas nécessairement dans les villes que l’ozone a ses plus fortes concentrations mais bien en dehors des agglomérations. Les causes en seront expliquées dans le chapitre 1.



Figure 3: Effets de l’ozone sur des feuilles de tabac variété Bel W3 avec 38 % de nécroses. Sources : JF Castell, Unité mixte de recherches Environnement et grandes cultures INRA-AgroParisTEch, Département environnement et agronomie, centre de recherche de Versailles-Grignon.

L’ensemble de la population est donc potentiellement concernée par de trop fortes concentrations d’ozone, l’ozone provoquant des réactions irritantes locales sur les muqueuses oculaires et respiratoires, des bronches jusqu’aux alvéoles pulmonaires.

L’ozone a également un effet néfaste sur la végétation, dont le blé et le tabac par exemple, y sont extrêmement sensibles [Feng et al., 2015]. De fortes concentrations d’ozone conduisent à la formation de nécroses sur les feuilles de tabac par exemple (figure 3). Plus le taux d’exposition à l’ozone est fort, et plus cela limite la photosynthèse des végétaux. La photosynthèse est l’action par laquelle les plantes utilisent l’énergie du soleil pour fabriquer leurs sucres, à partir du CO<sub>2</sub> et de l’eau du sol. Cette réduction de photosynthèse provoque des baisses de rendement pour

<sup>1</sup>Si la somme des électrons des atomes constituant une molécule est impaire, alors la molécule est dite radical, caractérisée par une grande réactivité et une faible durée de vie.

les cultures, voire des dépérissements des écosystèmes. L’ozone troposphérique a également un effet corrosif sur certains matériaux, comme le caoutchouc par exemple.

À l’échelle mondiale et européenne, de nombreuses réglementations sont mises en place par des organismes gouvernementaux, pour suivre et inciter à la diminution des émissions de précurseurs anthropogéniques produisant l’ozone troposphérique. Malgré ces réglementations, les concentrations d’ozone n’ont toujours pas diminué suffisamment (European Environment Agency report : [Guerreiro et al., 2012]). Le niveau de recommandation et d’information pour l’ozone est une moyenne horaire fixée à  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ce seuil correspond à un niveau de concentration dans l’atmosphère au-delà duquel une exposition de courte durée présente un risque pour des personnes sensibles. L’émission d’informations et des recommandations pour réduire certaines émissions de précurseurs sont appliquées. Les autorités recommandent aux conducteurs de véhicules à moteur à combustion de limiter leur vitesse ([www.airparif.asso.fr](http://www.airparif.asso.fr)). Le niveau d’alerte de l’ozone comprend trois seuils d’alerte pour la mise en oeuvre progressive de mesures d’urgence :

- 1<sup>er</sup> seuil :  $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$  dépassé pendant trois heures consécutives.
- 2<sup>ème</sup> seuil :  $300 \mu\text{g}/\text{m}^3$  dépassé pendant trois heures consécutives.
- 3<sup>ème</sup> seuil :  $360 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

Les niveaux d’alerte correspondent aux niveaux de concentration dans l’atmosphère au-delà duquel une exposition de courte durée présente un risque pour la santé de toutes personnes ou de dégradation de l’environnement. Des mesures d’urgence sont alors appliquées. Des mesures de restriction ou de suspension des activités industrielles ou des transports sont déclenchées ([www.airparif.asso.fr](http://www.airparif.asso.fr)).

## Méthodes d’observation de l’ozone

Il existe plusieurs techniques pour mesurer l’ozone dans la troposphère comme les mesures des réseaux sol et les techniques s’appuyant sur des mesures de rayonnement.

Les mesures de profils verticaux d’ozone sont obtenues à l’aide de ballons sondes utilisant des méthodes chimiques [Brewer and Milford, 1960, Komhyr, 1965, Kobayashi J., 1966, Komhyr, 1969]. Ces ‘ozonesondes’, ont l’avantage d’être peu coûteuses et d’être précises. Les ‘ozonesondes’ ont une résolution verticale des plus élevées dans la stratosphère, égale à 100 mètres. Le *World Ozone and Ultraviolet Data Center* (WOUDC, <http://woudc.org/data/>) fournit, grâce à des mesures prélevées par sondes, de longues séries temporelles d’ozone. Bien que les ozonesondes soient très utiles, leur faible couverture spatiale limite considérablement leur utilisation pour la description de la distribution globale du champ d’ozone.

Les mesures, provenant d’instruments à bord d’avions de lignes ou d’avion scientifiques, fournissent d’importantes sources d’informations sur les profils verticaux d’ozone durant le décollage, l’atterrissage et les altitudes de croisières (entre 9 - 12 km). Les premières mesures d’O<sub>3</sub> aéroportées systématiques ont débuté avec le programme *Measurements of OZone and water vapor by in-service Airbus air-Craft* mis en place par la communauté Européenne en 1993 (MOZAIC, [Marenco et al., 1998]). Suite au projet MOZAIC, le projet IAGOS (*In-service aircraft for a*



*global observing system*, [www.iagos.org](http://www.iagos.org); [Petzold et al., 2015]) participe également aux données aéroportées d'ozone.

Cependant, toutes ces techniques de mesures donnent des observations limitées en fréquence spatiale et temporelle. Seules les méthodes de sondages satellitaires permettent d'obtenir une large couverture spatio-temporelle à l'échelle globale. Pour sonder l'ozone atmosphérique, la spectrométrie passive (the Dobson network) et la technique active *Light Detection and Ranging* (LIDAR) sont utilisées. Les techniques de sondeur spatiaux reposent sur la mesure des radiations électromagnétiques à différentes longueur d'ondes, allant des ondes radios aux ondes ultra-violet (UV). De plus, deux types d'instruments spatiaux s'identifient : les instruments au limbe et au nadir. Les instruments au limbe balayent l'atmosphère sur la verticale au cours de leur orbite fournissant des profils verticaux limités à la stratosphère et à la mésosphère (l'incertitude étant trop grande en troposphère pour les utiliser). Un exemple d'instrument au limbe fournissant des profils d'ozone est l'instrument MLS (*Microwave Limb Sounder*) à bord du satellite AURA. Les instruments au nadir visent le sol produisant des données au contenu intégré sur la verticale avec un fort échantillonnage horizontal. Les données de la colonne totale de l'ozone sont particulièrement fournies dans l'UV et le visible, comme par exemple le sondeur OMI (*Ozone Monitoring instrument*) à bord de AURA ou le sondeur GOME-2 (*Global Ozone Monitoring Experiment-2*) à bord des satellites Metop. Mais peu de satellites procurent la colonne totale ou partielle d'ozone dans l'infrarouge (IR) thermique. Les premières mesures dans l'IR thermique datent de 1978 avec le sondeur TOVS (Tiros Operational Vertical Sounder) embarqué sur le satellite TIROS-N de la NOAA dont les mesures étaient peu précises. Le précurseur des instruments nadir à haute résolution spectrale est le spectromètre à transformée de Fourier l'*Interferometric Monitor for Greenhouse gases* (IMG, [Ogawa et al., 1994]) à bord du satellite japonais *Advanced Earth Observing Satellite* (ADEOS). Des mesures portant sur l'ozone troposphérique et sur la colonne totale d'ozone, ont été réalisées en 1996 pendant une période de 10 mois seulement [Turquety, 2002]. Des sondeurs à IR thermique permettent d'acquérir des séries temporelles sur l'ozone troposphérique tout en ayant une bonne couverture globale. Parmi ces sondeurs nous pouvons citer : le *Atmospheric Infrared Sounder* (AIRS, [Aumann et al., 2003]), le *Tropospheric Emission Spectrometer* (TES, [Beer, 1999]), et l'*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer* (IASI) [Clerbaux et al., 2009] à bord de Metop. Le sondeur IASI permet d'obtenir une couverture journalière globale à très haute résolution spectrale [Dufour et al., 2012] et présente par conséquent plus d'avantages que de nombreux instruments satellitaires [Oetjen et al., 2016].

## 4 Objectifs et plan de la thèse

Le travail de thèse s'est déroulé au sein du Centre Européen de Recherches en Formation Avancée de Calcul Scientifique (CERFACS) dans le complexe scientifique de Météo France, à Toulouse.

L'objectif de ce travail est de :

i) développer une méthode pour intégrer, sur de longues séries temporelles, les mesures ozone de IASI et du sondeur à émissions thermiques micro-ondes MLS.

ii) démontrer l'utilité des mesures IASI dans la surveillance à longue durée de l'ozone troposphérique.

iii) construire un profil a-priori dynamique d'ozone troposphérique et démontrer son intérêt dans le calcul des restitutions de IASI.

À cette fin, une méthode d'assimilation de données avec le modèle de chimie transport MOCAGE (*Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle*) a été mise en œuvre pour permettre d'obtenir des distributions globales d'ozone.

Ce travail s'inscrit dans le contexte de l'observation et de la surveillance de la qualité de l'air à l'échelle globale et européenne.

L'un des principal service européen est le *Copernicus Atmosphere Monitoring Services* (CAMS).

CAMS est un ensemble de services liés à l'exploitation d'observations satellitaires sur la composition atmosphérique (<http://atmosphere.copernicus.eu/>). Ce service est opéré par le *Centre Européen pour les Prévisions météorologiques à Moyen Terme* (CEPMMT ou en anglais *European Centre for Medium-Range Weather Forecast*, ECMWF) pour le compte de la commission Européenne dans le cadre de son programme Copernicus d'observation de la Terre. Le service européen Copernicus, héritage du programme GMES (Global Monitoring for Environment and Security), a été conjointement mis en place par l'European Space Agency (ESA) et par l'Union Européenne. Il a pour objectif de promouvoir le développement de services opérationnels pour la surveillance des milieux telle que l'atmosphère. Le projet de recherche MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate) fait partie du service GMES et fournit des réanalyses de composés atmosphériques à partir de données satellitaires. Le projet MACC fait suite au projet GEMS (Global and regional Earth-system Monitoring using Satellite and in-situ data; [Hollingsworth et al., 2008]). CAMS génère des réanalyses provenant des satellites Sentinels, complétées par des mesures *in situ*. Ces données sont alors combinées avec des modèles numériques en utilisant l'assimilation de données. Le service CAMS fournit des cartes et des séries temporelles de composés atmosphériques pour les années récentes (réanalyses) ainsi que des prévisions pour les jours à venir (prévisions). CAMS représente donc une référence sur les réanalyses de gaz atmosphériques, produits à partir de modèles de chimie et de plusieurs satellites.

La plupart des données utilisées pour la surveillance de l'ozone troposphérique et les réanalyses d'ozone produites, proviennent de satellites observant soit la stratosphère, soit la colonne totale qui est fortement influencée par la stratosphère. Très peu de satellites mesurant directement dans la troposphère sont utilisés. Plusieurs centres ont produit des réanalyses météorologiques, comme par exemple le NCEP (*National Centers for Environmental Prediction*, [Kalnay et al., 1996]), ECMWF [Gibson et al., 1997, Uppala et al., 2005, Dee et al., 2011], le JMA (*Japan Meteorological Agency*, [Onogi et al., 2007]) et le GMAO (*Global Modeling and Assimilation Office*, [Schubert et al., 1993]). Cette thèse a donc pour objectif de constituer une

base de référence et d'étudier l'intérêt de l'utilisation des données IASI dans la surveillance de l'ozone troposphérique.

La thèse se compose de huit chapitres.

Le premier chapitre donne les bases de la chimie troposphérique menant à la production et à la destruction de l'ozone. Sont également décrites, les principales caractéristiques de la dynamique troposphérique aux tropiques et celles liées au phénomène interannuelle de l'ENSO et à son impact sur la distribution d'ozone.

Le modèle de chimie transport utilisé pour cette étude est décrit dans le chapitre 2, ainsi que toutes les fonctions utilisées et appliquées lors du traitement des données satellitaires.

Les caractéristiques de ces données satellitaires sont données dans le chapitre 3. Sont détaillées en particulier les méthodes d'inversion et la méthode de restitution nécessaire pour l'acquisition des profils d'ozone à partir des mesures IASI.

La méthode d'assimilation de données satellitaires dans le modèle de chimie transport est décrite dans le chapitre 4.

Le chapitre 5 décrit les simulations développées lors de la thèse et utilisées pour les résultats.

Les principaux résultats de cette thèse sont présentés dans les chapitres 6 et 7.

Le chapitre 6 détaille la capacité de nos assimilations des données IASI d'ozone troposphérique pour suivre la variabilité de l'ozone liée à l'oscillation australe El Niño.

Le chapitre 7 montre comment les analyses d'ozone troposphérique peuvent s'améliorer en fournissant des a-priori plus réalistes à l'algorithme de restitution des profils d'ozone.

Les conclusions, ainsi que les perspectives pour de futurs travaux sont discutées dans un huitième et dernier chapitre.



# Chapitre 1

## L'ozone troposphérique : chimie et transport

Quand l'ozone troposphérique a été étudié, bien après celui de la stratosphère, les scientifiques pensaient qu'il provenait principalement des échanges entre la stratosphère et la troposphère. Ces échanges, causés par les transports dynamiques, induisent un flux positif d'ozone depuis la stratosphère, où il est présent en grande quantité, vers la troposphère. Ce fut seulement dans les années 1970 que les scientifiques [Chameides and Walker, 1973] et [Crutzen, 1974b], ont mis en évidence une origine photochimique de l'ozone troposphérique. Ils montrèrent que les quantités échangées dynamiquement entre les deux couches atmosphériques ne représentent que 20 % à 30 % au maximum de l'ozone troposphérique. La majorité de la production provient, en fait, de processus photochimiques complexes liés à la dégradation de CO et des COV en présence d'oxyde d'azote.

L'ozone troposphérique est donc un produit secondaire qui est produit quand deux polluants primaires réagissent. L'ozone troposphérique a une production chimique totale estimée à  $3420 \pm 770$  Tg/an et une durée moyenne de vie de 1 à 2 mois ([IPCC, 2007] et tableau 1 de l'introduction).

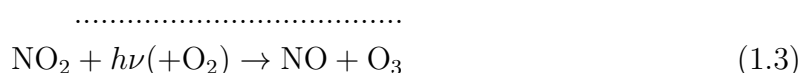
## 1.1 Production et destruction chimique de l'ozone

Le flux d'énergie essentiel dans la chimie atmosphérique est le rayonnement solaire. Le soleil émet un rayonnement couvrant différents domaines caractérisés chacun par des longueurs d'ondes bien spécifiques.

Parmi ce rayonnement, les longueurs d'ondes les plus courtes sont arrêtées dans la stratosphère par l'ozone stratosphérique entre environ 20 km et 50 km d'altitude. Ainsi, les réactions photochimiques (c'est-à-dire qui utilisent le rayonnement solaire, et donc les photons émis par celui-ci), ayant lieu dans la troposphère, se produisent aux longueurs d'ondes supérieures à 290 nm.

Les premiers processus de production de l'ozone troposphérique font intervenir les précurseurs tels que les oxydes d'azote : monoxyde (NO) et dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>), [Crutzen, 1974a, McElroy et al., 1976]. Ces deux molécules sont composées de deux principaux atomes présents dans la troposphère à l'état naturel. La combinaison des deux molécules (NO et NO<sub>2</sub>) résulte d'un phénomène de combustion à très haute température en présence d'un excès d'oxygène. Ce processus peut très bien être d'origine naturel (par exemple la foudre) qu'anthropique (c'est-à-dire provenant des activités humaines). En tant que phénomènes naturels, il y a par exemple les orages qui procurent une très forte température au voisinage des éclairs et les incendies de forêts. Concernant les activités humaines, il y a les combustions des moteurs de véhicules, le chauffage, l'agriculture (tels que les polluants agricoles et les feux de biomasses), etc.

Dans la troposphère, la principale réaction de formation de l'ozone est la photolyse du dioxyde d'azote NO<sub>2</sub>. Elle se produit, tout de suite après la formation du NO<sub>2</sub>, en présence d'oxygène.



L'atome d'oxygène libéré dans l'équation 1.1 se met par l'action du rayonnement, et plus particulièrement par l'absorption d'un photon, dans un état d'excitation où il va réagir avec l'oxygène de l'air pour produire de l'ozone (équation 1.2, [Finlayson-Pitts and Pitts, 1993]).

De manière générale, une excitation est favorable à une transformation chimique contrairement à l'état fondamental d'une molécule. Dans une réaction photochimique, le photon fournit l'énergie requise pour surmonter la barrière de potentiel d'énergie d'activation, associée à la transformation. Les réactions entre molécules stables étant impossibles, ce sont ces réactions photochimiques qui sont l'élément majeur de la chimie atmosphérique, puisqu'elles représentent la principale source de radicaux dans la troposphère et initient les transformations en phase gazeuse [Graedel et al., 1986].

Le radical NO peut ensuite réagir avec l'O<sub>3</sub> pour reformer du NO<sub>2</sub> :



Pour connaître la proportion de ces réactions, il est utile de savoir quels sont les phénomènes prédominants dans la troposphère.

La réaction 1.3 sera beaucoup plus efficace et intense selon l'intensité du rayonnement ( $I$ ). Cette réaction dépend également de la température et de la concentration élevée ou non du NO<sub>2</sub>.

La production d'ozone peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$k_3 * I * [\text{NO}_2]$$

De même, la destruction d'ozone peut s'écrire de la façon suivante :

$$k_4 * [\text{NO}] * [\text{O}_3]$$

avec  $k_3$  et  $k_4$  des coefficients dépendants de la température.

Si l'équilibre est atteint, la production et la destruction sont égales et il s'écrit alors :

$$k_3 * I * [\text{NO}_2] = k_4 * [\text{NO}] * [\text{O}_3]$$

$$\text{ou encore : } [\text{O}_3] = (k_3 * I * [\text{NO}_2]) / (k_4 * [\text{NO}]) = (k_3/k_4 * I) * ([\text{NO}_2]/[\text{NO}])$$

On note donc la constante d'équilibre

$$K = [\text{NO}] \cdot [\text{O}_3] / [\text{NO}_2] = k_3 \cdot I / k_4$$

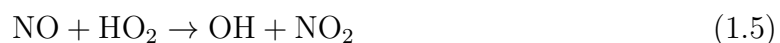
ou encore

$$[\text{O}_3] = K \cdot ([\text{NO}_2]/[\text{NO}])$$

Il s'agit d'un état dit photostationnaire. Le rapport  $[\text{NO}_2]/[\text{NO}]$  dépend de  $[\text{O}_3]$ , de la température et de l'intensité du flux solaire.

Ainsi, si les quantités d'oxyde d'azote sont importantes, la quantité d'ozone est fonction du rapport des concentrations entre NO<sub>2</sub> et NO (que l'on notera  $K_{\text{NO}_2/\text{NO}}$ ). Ce rapport sera d'autant plus grand que le flux solaire est important, ce qui explique la formation fréquente de maxima d'ozone en milieu de journée (figure 1.1).

La réaction clé dans ce processus fait entrer en jeu les radicaux hydroxyles :



Une production supplémentaire d'ozone apparaît avec la présence de cycles catalytiques du type :

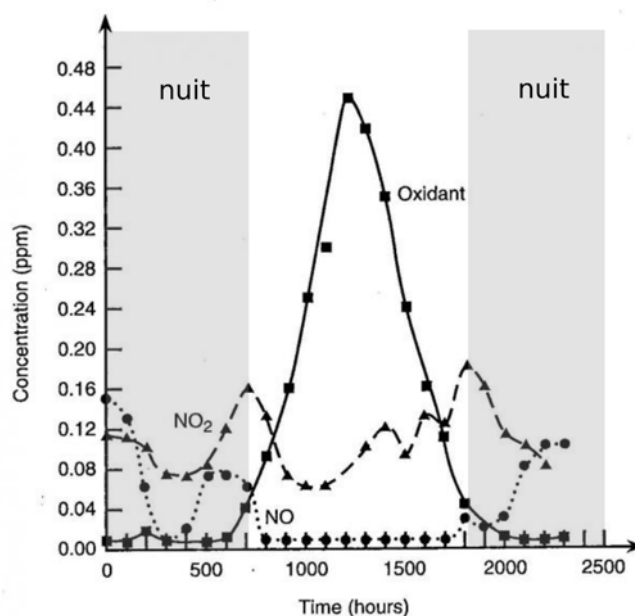
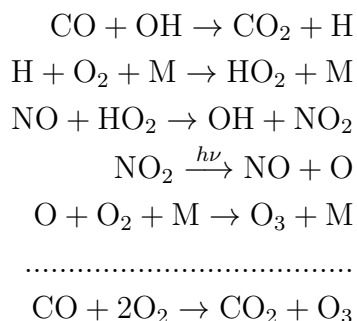


Figure 1.1: Caractéristiques communes aux épisodes de pollution photochimique. Concentrations en ppmv de NO (en pointillé), NO<sub>2</sub> (en tiret) et O<sub>3</sub> (en trait plein) mesurées à Pasadena, Californie [Finlayson-Pitts and Pitts, 1977]



Donc en présence d'oxydes d'azote, le CO et de manière plus générale les COVs sont oxydés en produisant de l'ozone.

Le CO provient de la combustion incomplète des hydrocarbures fossiles et de la biomasse (feux de forêts). Il est également produit dans l'atmosphère par oxydation du méthane (ou d'autres hydrocarbures). L'ozone n'est produit par le CO que par la présence d'oxyde d'azote (NO<sub>x</sub>) qui servent de catalyseurs<sup>1</sup>. En présence de NO<sub>2</sub>, il y a production d'ozone et de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) (avec consommation de O<sub>2</sub>). En l'absence de NO<sub>2</sub>, c'est l'inverse et il y a production de O<sub>2</sub>.

Les COV correspondent (hormis le CO) à tous les composés contenant du carbone, et pouvant être volatils. Pour la plupart, ce sont les végétaux qui les produisent lors de journées chaudes et ensoleillées. Après l'oxydation des COV par le

<sup>1</sup>Substance qui initie une réaction et qui augmente sa vitesse de réaction mais qui n'y participent pas directement.



radical OH, les composés formés (les radicaux peroxy organiques) conduisent à la formation du  $\text{NO}_2$ , le polluant primaire et responsable de la production d'ozone.

Les fortes concentrations d'oxydes d'azote sont majoritairement situées dans les agglomérations puisqu'elles sont produites par la pollution urbaine. Il est donc attendu que les pics d'ozone soient également dans les agglomérations, proches des sources de production. Cependant, ce n'est pas ce que nous observons. C'est en s'éloignant des agglomérations que la concentration d'ozone augmente avec, parfois, des taux dépassant les normes Européennes qui correspondent à des valeurs limites pour des objectifs de qualité sur le long terme relatives à la qualité de l'air ambiant (<http://www2.prevoir.org/> et voir également la section 3 de l'introduction).

Un exemple s'observe durant l'été 2015 pour l'Ile de France, en région Parisienne, où les panaches de pollution d'ozone se situent entre 20 km et 50 km de Paris (Figure 1.2).

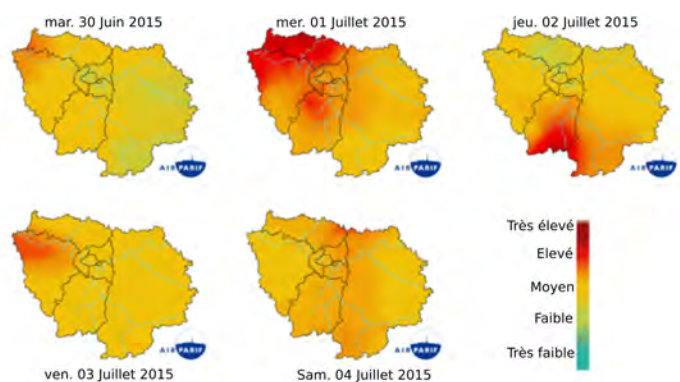


Figure 1.2: Épisode de pollution d'ozone sur l'Ile de France du mardi 30 juin au samedi 4 juillet 2015. (<http://www.airparif.asso.fr/actualite/detail/id/142>)

La raison provient de l'origine des composés responsables de la formation d'ozone. C'est dans les agglomérations que se trouvent les émissions d'oxydes d'azote, cependant les COV sont libérés par la végétation, ils sont donc présents en plus grande quantité dans les campagnes. C'est pourquoi dans les zones urbaines, il existe peu de production d'ozone dont la vitesse de réaction est très faible. Lors de pollution intense, les masses d'air chargées en oxydes d'azote captent les COV à la sortie des villes et principalement sur les forêts. Le rapport COV/ $\text{NO}_x$  augmente alors rapidement, conduisant à une production importante d'ozone s'il s'agit d'une journée bien ensoleillée. Il en résulte une pollution à l'échelle régionale. Cette situation peut-être accentuée si un anticyclone est présent, ralentissant le mouvement des masses d'air, et donc la dispersion des polluants [Delmas et al., 2005].

Etant donné la longue durée de vie de l'ozone (1 à 2 mois), le transport atmosphérique influence la répartition de l'ozone. Ce transport peut-être limité à la troposphère ou inclure la stratosphère (section 1.2).

Par ailleurs, la répartition de l'ozone à l'échelle globale montre une saisonnalité en fonction de la latitude (figure 1.3). La colonne troposphérique d'ozone (TCO pour *Tropospheric Column Ozone* en anglais) est, durant toutes les saisons (figure 1.3),

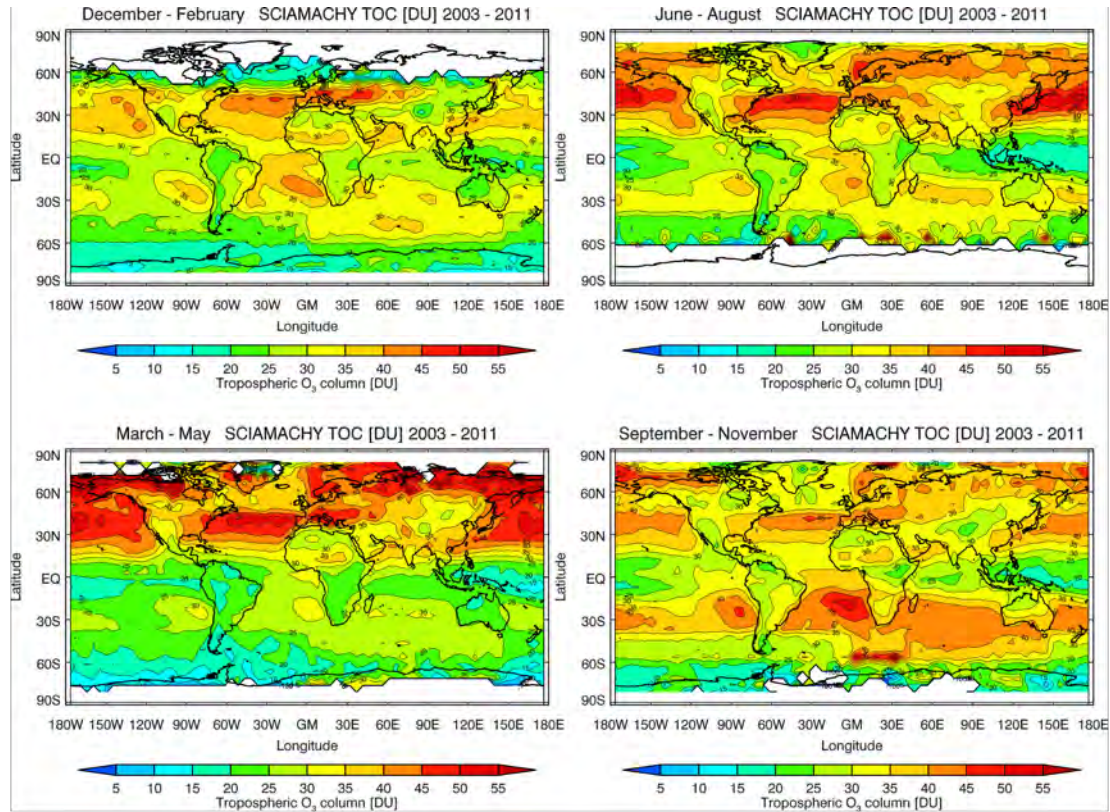


Figure 1.3: Répartition globale de l'ozone troposphérique (en DU) de 2003 à 2011 observée par mesures aux limbes et aux nadir du spectromètre SCIAMACHY. SCIAMACHY (*Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmosphere Chartography*) a analysé la chimie atmosphérique de 2002 à 2012 à bord du satellite défilant ENVISAT de l'ESA. De gauche à droite et de haut en bas, moyenne pour les mois de : décembre-février, juin-août, mars-mai, septembre-novembre. [Ebojie et al., 2016]

maximale dans les zones industrialisées comme en Europe, en Chine et à proximité des grandes villes américaines (entre 30 et 55 DU<sup>2</sup>). De fortes concentrations d'ozone sont également observées dans l'Afrique centrale et en Amérique du sud durant la saison sèche pour les mois de septembre à février. Cette production d'ozone est liée aux feux de biomasse qui libèrent du monoxyde de carbone. L'ozone est transporté par les vents zonaux depuis ses sources d'émissions jusqu'au dessus des océans où peu de sources existent en précurseurs d'ozone. Durant les mois de juin à août, c'est-à-dire durant l'été boréal, la TCO a des valeurs élevées dans l'hémisphère Nord extratropical dues aux productions photochimiques à partir des pollutions anthropogénique de NO<sub>x</sub> [Chandra et al., 2004]. Durant cette saison, les effets de la pollution ainsi que des échanges entre la stratosphère vers la troposphère, des feux de biomasse et des éclairs, jouent également un rôle dans la hausse des valeurs de TCO [Thompson et al., 2008, Chandra et al., 2004].

<sup>2</sup>Dobson Unit : si l'on ramenait tout l'ozone de la stratosphère dans les conditions thermodynamiques standard (0° et 1 atm), une couche d'épaisseur moyenne de 3 mm correspondrait à 300 DU.

## 1.2 Echanges stratosphère-troposphère

### La tropopause

La troposphère et la stratosphère sont séparées par la tropopause (voir introduction). Cette couche de transition possède plusieurs définitions pour estimer son exacte altitude.

Elle est définie comme tropopause thermique par l'OMM (Organisation Météorologique Mondiale, ou *World Meteorologic Organisation WMO* en anglais) comme le plus bas niveau où le gradient vertical de température décroît de 2 K/km ou moins, avec le gradient vertical moyen entre ce niveau et tout autre niveau situé dans un périmètre de 2 km n'excédant pas 2 K/km.

La tropopause peut également être définie par ses propriétés dynamiques. Elle correspond alors à la couche atmosphérique où la vorticité potentielle est de 1.6 PVU (1 PVU pour *Potential Vorticity Units* =  $1.10^{-6} \text{ m}^2\text{K/s/kg}$ ) [WMO, 1986].

Il existe une autre définition pour la tropopause basée sur la transition entre la faible concentration d'ozone dans la troposphère et celle élevée dans la stratosphère. [Bethan S. and Reid, 1996], notent que cette tropopause est plus basse que celle définie thermodynamiquement.

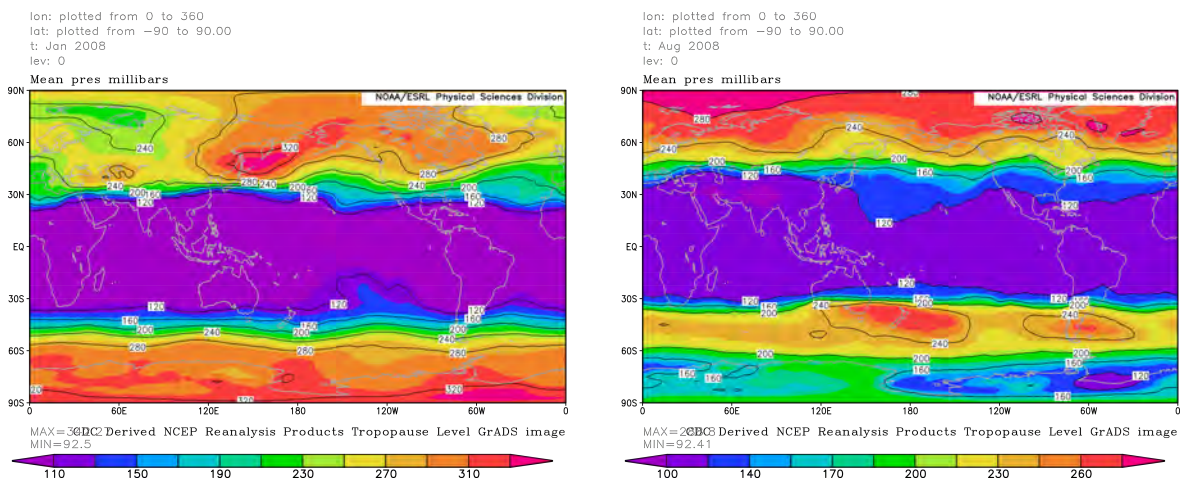


Figure 1.4: Moyenne mensuelle pour janvier (à gauche) et août (à droite) 2008 de la pression (en hPa) correspondant au niveau de tropopause obtenue à partir des données de la *Division des Sciences Physique, Earth System Research Laboratory, NOAA, Boulder, Colorado*, à partir de leur site Web <http://www.esrl.noaa.gov/psd/>. Les niveaux de tropopause ont été calculés à partir du gradient thermique.

Le niveau de la tropopause est plus haut dans les tropiques et à l'équateur, et diminue vers les pôles. De plus, dans les moyennes latitudes, la tropopause est plus haute en été qu'en hiver (figure 1.4).

La distribution verticale de l'ozone dans la basse stratosphère est influencée par la circulation troposphérique par l'intermédiaire de la tropopause. Au niveau de l'équateur, la convection est intense, favorisant la montée des masses d'air jusqu'à des altitudes élevées. La tropopause se trouve alors à une altitude de 18 km environ. Au-delà de la barrière tropicale, la tropopause se trouve à une altitude variant de

12 km aux moyennes latitudes à 8 km aux pôles. Par conséquent, la tropopause, tel un couvercle, contraint la répartition verticale de l'ozone. Il en résulte un maximum d'ozone situé à plus haute altitude dans la zone intertropicale et à plus basse altitude aux pôles.

### **Les échanges au niveau de la tropopause**

De nombreux processus dynamiques sont responsables du transport d'ozone depuis la stratosphère vers la troposphère. Mais à grande échelle, le plus connu provient de la circulation de Brewer-Dobson. Un mouvement de boucle s'opère par cette cellule, avec des mouvements subsidents dans les extra-tropiques et des mouvements ascendants à l'équateur au niveau de la tropopause [Moh, 2008, Neu et al., 2014].

A l'échelle locale, les variations entre les zones de haute et de basse pressions influencent la hauteur de la tropopause et en conséquence la colonne verticale de l'ozone.

Lors du passage d'un front froid, la variation rapide de pression peut également donner naissance à une foliation de tropopause [Shapiro, 1980, Appenzeller and Davies, 1992]. C'est-à-dire une injection d'air stratosphérique riche en ozone dans la troposphère. Il s'ensuit alors une modification du profil vertical de l'ozone dans une région d'environ 1000 km d'extension horizontale. En janvier, environ 25 DU, soit environ 5 % de la colonne totale est transportée de la stratosphère vers la troposphère extra-tropicale. Dans les tropiques, un mouvement inverse s'opère transportant les faibles valeurs d'ozone troposphérique dû au mélange par la convection [Salby and Callaghan, 2006]. En mai, la colonne d'ozone transportée vers la troposphère excède 130 DU, représentant 25 % de la colonne totale à cette période de l'année [Salby and Callaghan, 2006].

## **1.3 Dynamique troposphérique aux tropiques**

Les tropiques, mentionnés tout au long de cette étude, font référence à la bande latitudinale comprise entre 30° S et 30° N, représentant 50 % de la superficie totale du globe. La zone équatoriale, ainsi que les tropiques du cancer (23°27' N) et du capricorne (23°27' S) en font parties.

La variabilité spatiale du climat rencontrée dans les tropiques est plus forte que celle des moyennes latitudes due à un important couplage atmosphère-océan.

Cette section porte, en premier lieu, sur la description de l'atmosphère tropicale en décrivant rapidement les causes de sa dynamique et sa circulation atmosphérique.

Son intérêt est de souligner les processus tropicaux impliquant une variation de la concentration d'ozone dans les tropiques et plus particulièrement au niveau de l'océan Pacifique.

### **1.3.1 Définition et spécificités des régions tropicales**

Le maximum de rayonnement solaire est localisé au niveau de l'équateur. L'air s'y réchauffe fortement et s'élève en altitude (dû à sa faible densité).



En se reportant au profil vertical de température dans l'atmosphère (figure 2), la troposphère est caractérisée par une décroissance de la température avec l'altitude. Ce profil de température rend cette couche hydrostatiquement instable. Il en résulte des transports verticaux par convection thermique (l'air chaud monte alors que l'air froid descend) pour toutes latitudes et longitudes. Cette convection permet d'homogénéiser la composition de l'air. Elle y est donc particulièrement intense à l'équateur due à la forte insolation.

La convection engendre des mouvements ascendants des masses d'air. Elle est caractérisée par des zones de basses pressions à sa base (ex : cellules orageuses). A l'inverse, les zones de hautes pressions sont situées dans les zones de subsidence des masses d'air, proches des mouvements descendants (subsident).

Par ailleurs, la convection engendre une convergence des vents à sa base. Ces masses d'air chargées en humidité vont se refroidir en altitude et former d'importantes précipitations et une épaisse couche nuageuse formant ainsi la Zone de Convergence Inter-Tropicale (ZCIT ou ITCZ en anglais pour *Inter-tropical Convergence Zone*, figure 1.5).

Le système convectif principal qui joue un rôle primordial dans la circulation atmosphérique de la troposphère tropicale est représenté par les cellules de Hadley (section 1.3.2) dont leur branches ascendantes se développent à l'équateur.

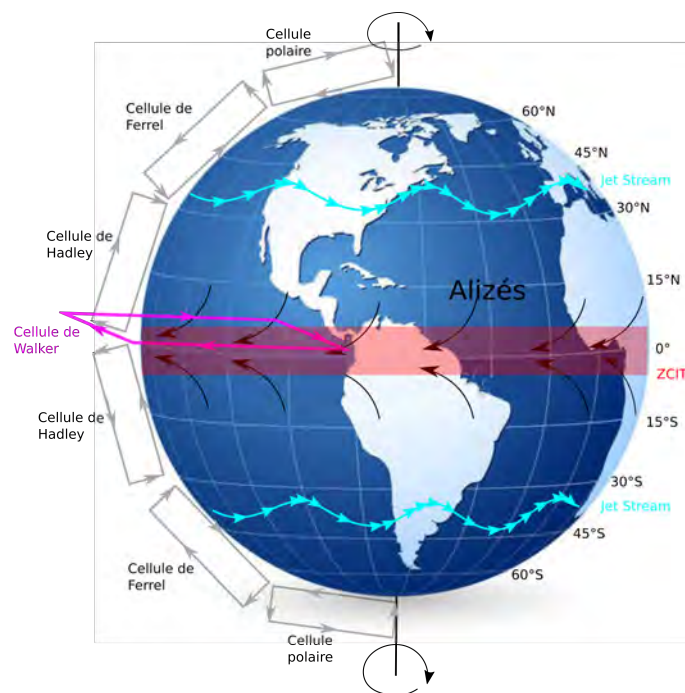


Figure 1.5: Cellules dynamiques globales dans la troposphère.

L'inclinaison de l'axe de la Terre, sur l'écliptique, influence le maximum d'ensoleillement qui se déplace entre les deux tropiques suivant les saisons. Cela modifie la position de la ZCIT autour de l'équateur au cours d'une année et par conséquent la hauteur de la tropopause, ce qui impacte la distribution de l'ozone dans la basse stratosphère.

De plus, des oscillations d'origines atmosphérique et océanique contrôlent la

circulation tropicale troposphérique. La plus connue est celle de l'oscillation du courant océanique El Niño-La Niña (ENSO, El Niño Southern Oscillations, [Walker and Bliss, 1932]). De même, l'oscillation de [Madden and Julian, 1994] influence les zones de précipitation avec un déplacement d'Est en Ouest sur l'océan Pacifique et dont sa périodicité (30 à 60 jours) est liée à l'ENSO.

### 1.3.2 La dynamique atmosphérique tropicale

#### La cellule de Hadley

Les cellules de Hadley (figure 1.5) naissent au niveau de la ZCIT. Il en existe deux, de part et d'autre de l'équateur. Les masses d'air chaudes et chargées en humidité et en vapeur d'eau, suite à leur passage sur les océans et les continents humides, s'élèvent dans la ZCIT. Elles se refroidissent durant l'ascendance. Ce refroidissement engendre alors une condensation de la vapeur d'eau produisant une épaisse couverture nuageuse et développant de fortes précipitations. Cet air s'assèche et redescend au dessus de chaque tropique et y forme une ceinture anticyclonique tropicale. En arrivant au niveau du sol, les masses d'air divergent et se dirigent vers l'équateur. Mais par la force de Coriolis, ces masses sont légèrement déviées. Ces vents provenant de l'Est dans les deux hémisphères sont nommées Alizés et convergent dans la ZCIT. Ainsi se forme la cellule de Hadley. La cellule de Hadley brasse en un an un volume d'air équivalent à celui de toute la troposphère.

De chaque côté de la cellule de Hadley se forme les cellules de Ferrel (figure 1.5) et les cellules polaires où s'alternent zones de basses et de hautes pressions. Ces principales cellules caractérisent la composante méridienne de la circulation générale de l'atmosphère, les ascendances équatoriales étant un élément majeur.

L'ozone qui a un temps de vie moyen (1 à 2 mois) et ses précurseurs peuvent ainsi être transportés par cette circulation méridienne.

#### La cellule de Walker

C'est en 1969, que Bjerknes mentionne pour la première fois l'hypothèse sur l'existence d'une cellule zonale atmosphérique le long du Pacifique équatoriale [Bjerknes, 1969].

Bjerknes nommera cette cellule "Cellule de Walker" dès 1923 en référence à Walker qui admettait le rôle de la cellule dans l'oscillation australe du Pacifique Sud. Il existe d'autres cellules similaires le long de l'équateur (figure 1.6) qui selon [Flohn, 1971] seraient au nombre de quatre : les cellules Pacifique, Atlantique, Afrique (Zaïre) et Indienne.

Les zones de subsidence se localisent sur l'océan Pacifique Est, l'océan Atlantique Est et l'Ouest de l'océan Indien.

Les zones d'ascendance produisent de fortes convections au niveau de l'Amazonie, de l'Afrique et de l'Indonésie (aussi appelé continent maritime). Bien que l'archipel indonésien soit constitué principalement de mer, la présence de milliers d'îles limite le transport méridien de chaleur par les courants. C'est donc grâce à l'atmosphère que s'évacue l'excédent d'énergie, comme sur les continents, par des mouvements

convectifs toujours localisés dans l'hémisphère d'été (juillet pour l'Hémisphère Nord et janvier pour l'Hémisphère Sud).

En janvier, la convection profonde se situe entre l'équateur et  $15^\circ$  S, sur l'Amazonie et l'Afrique Australe. Elle est également située entre l'Indonésie et la Polynésie française, en lien avec la mousson indonésienne.

En juillet, les deux zones convectives sur les continents migrent vers l'hémisphère Nord où apparaît alors la mousson africaine. La convection sur le continent maritime migre vers l'Himalaya et donne naissance à la mousson d'été indienne.

Chaque cellule de Walker se situe dans le plan perpendiculaire des cellules méridienne de Hadley. Les Alizés générés par les cellules de Hadley sur l'océan Pacifique, orientés d'Est en Ouest, déplacent avec eux les eaux de surface du Pacifique et initient la cellule de Walker du Pacifique. L'orientation de la cellule de Walker dépend du gradient de la température de surface de la mer (ou Sea Surface Temperature, SST, en anglais) dirigé vers l'Ouest pour la cellule Pacifique.

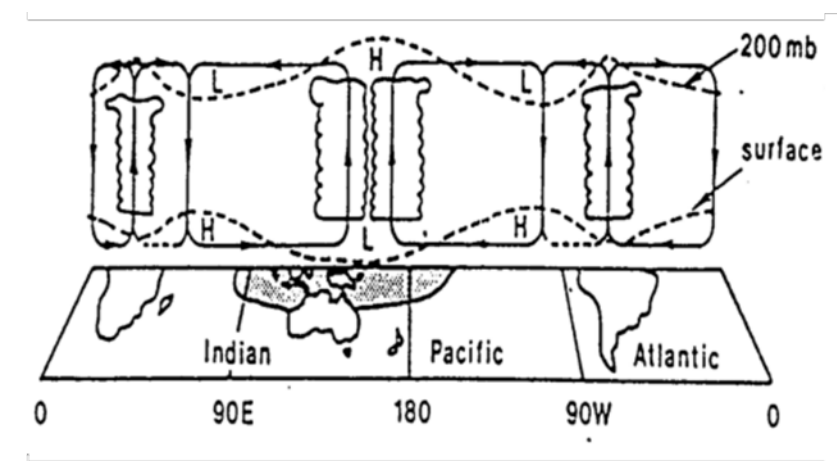


Figure 1.6: Circulation de Walker dans un plan équatorial-vertical. La hauteur du géopotential à la surface et à 200 mb (environ 12 km) sont indiqués en pointillés. [Webster, 1983]

Par le biais des Alizés, les eaux de surface du Pacifique se réchauffent sur l'Ouest du Pacifique suite à leur déplacement. L'augmentation du volume d'eau rencontrée autour de l'Indonésie tend à abaisser la thermocline dans cette région et à augmenter la SST. La hausse de chaleur générée conduit alors à une importante évaporation des eaux de surface qui induit des mouvements ascendants. Il s'agit alors de la branche convective de la cellule de Walker. À l'inverse, le long des côtes de l'Amérique du Sud, la divergence des eaux de surface fait remonter la thermocline jusqu'à la surface. Cette remontée de la thermocline tend à amener les eaux de profondeur vers la surface, phénomène nommé "upwelling". Au niveau de l'upwelling, se trouve la branche descendante de la cellule de Walker (figure 1.7a). La variabilité de l'intensité de la cellule de Walker est liée principalement à l'ENSO dont les caractéristiques sont décrites dans la section suivante. Cette variabilité induit un signal caractéristique sur l'ozone troposphérique qui fait l'objet du chapitre 6.

## 1.4 Variabilité de l'ozone dans le Pacifique influencée par le forçage dynamique de El Niño Southern Oscillation (ENSO)

L'ENSO est un phénomène couplant l'atmosphère et l'océan. Ses effets sur l'océan et l'atmosphère ont été documentés dans de nombreuses études. [Trenberth, 1997] fournit une description précise de l'ENSO. Ce phénomène climatologique traversant le Pacifique tropica comprend deux phases : la phase chaude associée à El Niño et la phase froide à La Niña.

Ce phénomène apparaît tout les 2 à 7 ans le long de l'équateur sur le Pacifique. Chaque phase génère des perturbations prédictibles sur la température de l'océan, les précipitations et les vents. Les principaux pics d'activités de l'ENSO se produisent en automne, d'octobre à janvier. Ces changements perturbent la dynamique atmosphérique dans les tropiques, générant une cascade d'effets à l'échelle planétaire.

Lors d'un épisode El Niño (figure 1.7b), les hautes pressions du Pacifique Sud diminuent, affaiblissant les Alizés. Les eaux chaudes se situent alors vers l'océan Pacifique central, décalant la cellule de Walker vers l'Est de l'océan Pacifique. Par conséquent, la convection se situe sur l'océan Pacifique centrale et la subsidence se situe au-dessus de l'Indonésie.

Durant des épisodes de La Niña (figure 1.7c), les hautes pressions du Pacifique Sud sont intensifiées, accélérant et renforçant les Alizés. La température des eaux sur l'Ouest de l'Océan Pacifique augmente d'autant plus. La cellule de Walker est par conséquent encore plus marquée qu'à l'ordinaire.

L'ENSO exerce une influence majeure sur la variabilité interannuelle de la chimie troposphérique. Il affecte en particulier la colonne d'ozone [Randel and Thompson, 2011]. Des niveaux sans précédent d'ozone troposphérique ont été mesurés en 1997 et 1998, coïncident avec les feux de biomasse sur l'Indonésie durant les conditions sèches, induits par un des événements El Niño les plus intenses jamais enregistrés [Fujiwara et al., 1999, Chandra et al., 2002]. Cet événement de 1997 a augmenté l'intérêt pour étudier l'impact de l'ENSO sur l'ozone troposphérique, et en particulier l'importance de la chimie atmosphérique liée à l'augmentation des feux de biomasse durant El Niño.

Les effets de l'ENSO sur la composition atmosphérique, tel que l'ozone troposphérique, n'ont été étudiés que depuis peu à partir de données satellitaires [Chandra et al., 1998, Chandra et al., 2002, Nassar et al., 2009, Ziemke et al., 2010, Randel and Thompson, 2011, Neu et al., 2014] et de mesures in-situ [Fujiwara et al., 1999, Lee et al., 2010, Randel and Thompson, 2011].

L'ozone troposphérique dans les tropiques est particulièrement sensible aux changements de la convection profonde associée à l'ENSO. Une augmentation (diminution) de la convection dynamique dans le Pacifique Tropical par l'ENSO induit une diminution (augmentation) de la TCO [Ziemke et al., 2015]. Par conséquent, les conditions durant la phase El Niño génèrent une réduction de l'ozone troposphérique



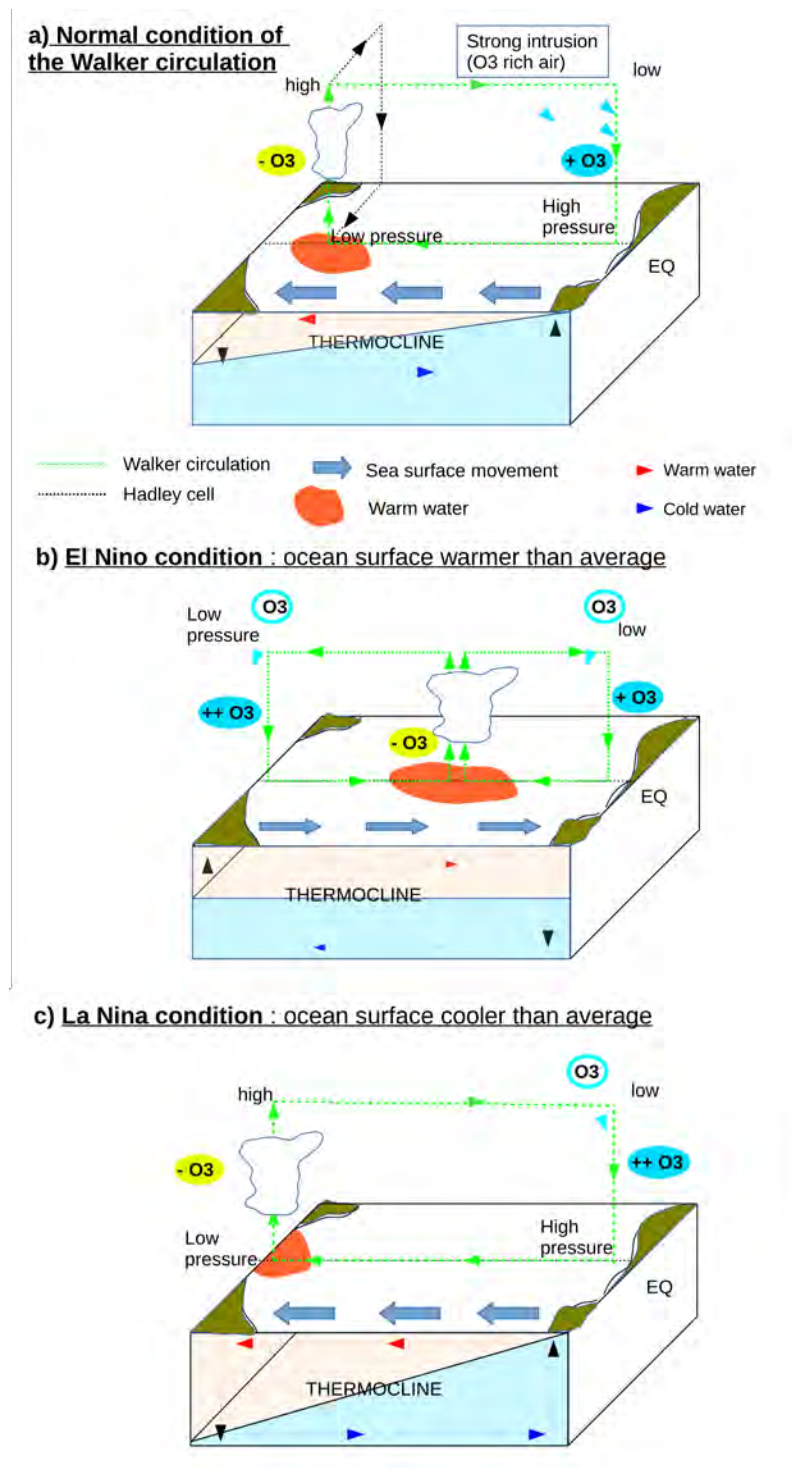


Figure 1.7: Circulations atmosphériques et océaniques liées aux oscillations de la cellule de Walker : a) en condition normale, b) durant El Niño, c) durant La Niña.

tropicale au dessus de l'océan Pacifique central et une augmentation de la TCO sur l'Indonésie et l'océan Indien.

L'ENSO affecte l'ozone troposphérique en alternant ses précurseurs, telle qu'une augmentation de l'émission des feux de biomasses sur l'Indonésie suite à une suppres-

sion des précipitations durant El Niño. Les conditions survenant lors de La Niña produisent une réponse antisymétrique de la TCO [Olsen et al., 2016].

Les phénomènes El Niño et La Niña sont les sources principales de variabilité décennale de l’ozone troposphérique dans l’atmosphère tropicale [Ziemke, J. R. and Chandra, 2003].



## Chapitre 2

# Le modèle de chimie transport MOCAGE

Les mesures locales et les observations ne suffisent pas pour représenter en globalité et pour comprendre en détails un phénomène physique, malgré une certaine fiabilité présente sur ces jeux de données. En particulier, les observations in-situ et les données satellitaires ne sont pas réalisées à la même fréquence spatiale et temporelle. Les mesures sont prises localement pour les observations *in situ* et ne présentent pas une couverture spatiale importante, alors qu'elles sont globales pour les satellites mais souvent peu résolues sur la verticale et donc moins fiables verticalement.

La modélisation devient alors indispensable pour apporter des informations supplémentaires aux observations car elle permet de représenter quelques différents processus physico-chimiques de l'atmosphère pour ces différentes échelles spatio-temporelles. Cependant, pour évaluer la qualité des résultats obtenus par modélisation, les observations restent indispensables.

Pour notre étude il est nécessaire d'utiliser un modèle qui représente aussi bien la stratosphère que la troposphère. En effet, la représentation de l'ozone dans la stratosphère est importante car c'est dans cette couche de l'atmosphère que se situe principalement l'ozone et que des échanges de la stratosphère vers la troposphère peuvent se produire (cf. Chapitre 1). Le choix du modèle s'appuie sur la comparaison du temps de vie chimique du constituant atmosphérique par rapport au temps de vie dynamique de l'espèce dans la zone d'intérêt. L'ozone troposphérique a une durée de vie de plusieurs semaines à quelque mois (cf. Chapitre 1), suffisante pour le transporter sur plusieurs milliers de km. Il faut donc utiliser un modèle de chimie transport (CTM pour *Chemistry Transport Model* en anglais) global.

Les CTM décrivent les principaux processus physiques et chimiques qui agissent dans l'atmosphère. Ils simulent le transport, ainsi que les sources et les puits des principaux composés chimiques de l'atmosphère. Les principaux processus de la chimie atmosphérique qu'un modèle CTM doit représenter sont classés en quatre domaines, impliqués chacun dans l'évolution spatiale et temporelle des distributions des espèces chimiques [Delmas et al., 2005] :

- les transformations (photolyses, chimie réactive, ...),
- le transport (diffusion turbulente, convection, grande échelle, ...),

- les puits (lessivage et dépôts secs)
- et les sources (émissions anthropiques ou naturelles).

Les forçages météorologiques (vents, température, pression, ensoleillement/radiation, ...) influencent ces quatre domaines. Le transport et les sources influencent les concentrations atmosphériques, alors que les puits et les transformations doivent prendre en compte les concentrations des espèces pour pouvoir être quantifiés. Enfin, une boucle rétroactive se forme puisque les concentrations des espèces influencent les forçages atmosphériques par leur effet radiatif par exemple.

Les CTM sont étroitement reliés aux Modèles de Circulation Générale (MCG). Ces derniers ont pour but de décrire le comportement dynamique et thermodynamique ainsi que les flux de température du fluide atmosphérique. Les MCG sont également utilisés pour simuler la réponse du système climatique mondial à l'augmentation des concentrations de gaz à effet de serre (IPCC : [http://www.ipcc-data.org/guidelines/pages/gcm\\_guide.html](http://www.ipcc-data.org/guidelines/pages/gcm_guide.html)).

Les CTM, au contraire, se concentrent sur le calcul des champs d'espèces chimiques en prenant en compte les paramètres thermodynamiques adéquats des MCG (vent, température, pression, humidité).

Dans la première partie de ce chapitre, les généralités et les caractéristiques sur le modèle de chimie transport, MOCAGE, employé pour cette étude seront rappelées. Notamment, le schéma chimique linéaire CARIOLLE, qui a été adopté dans cette étude pour rendre compte des sources et des puits photochimiques de l'ozone sera détaillé.

## 2.1 Généralités et caractéristiques de MOCAGE

Le modèle utilisé pour cette étude est le *Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle* (MOCAGE, [Peuch et al., 1999, Teyssède et al., 2007]) développé depuis 1999 par le *Centre National de Recherches Météorologiques* (CNRM) de Météo France. Il s'agit d'un CTM tri-dimensionnel permettant une représentation en trois dimensions (latitude, longitude, et verticale) de l'atmosphère évoluant au cours du temps. MOCAGE est capable de simuler les interactions entre la dynamique et la chimie dans la stratosphère et dans la troposphère.

Il est utilisé principalement pour les études d'interaction chimie-climat, mais des versions permettent aussi des études régionales à l'échelle européenne (projet européen CAMS, <https://atmosphere.copernicus.eu/>) et nationale (projet PREVAIR, <http://www2.prevoir.org/>, [Rouil et al., 2009]).

### 1. Forçages météorologiques

Les CTM peuvent être couplés directement avec un MCG pour fonctionner en mode *on-line*, afin que les paramètres météorologiques soient calculés à chaque pas de temps par le MCG et en même temps que la chimie. Malgré que ce mode soit le plus rigoureux car il tient compte de la rétroaction de la chimie sur la dynamique, le temps de calcul nécessaire est trop long, limitant l'utilisation de ce mode. Dans cette étude, MOCAGE a été utilisé en mode forcé (ou mode *off-line*). Dans ce cas, les paramètres météorologiques nécessaires pour le calcul du transport des traceurs (afin d'alimenter le schéma d'advection semi-Lagrangien, détaillé par la suite) sont fournis soit par des champs précalculés soit par des analyses produites à partir d'un MCG. Le fait d'utiliser ces paramètres sans les recalculer permet au CTM d'être relativement rapide. Les forçages météorologiques (vents, température, pression et humidité), utilisés dans cette étude, proviennent de la réanalyse ERA-Interim produite par le modèle Integrated Forecast System (IFS) du ECMWF. Alors que la fréquence temporelle peut aller de 3h (pour les champs issus de la prévision) à 12h selon les modèles, elle est de 6h pour les champs issus des réanalyses de l'IFS. Ces forçages dynamiques provenant de ERA-Interim sont fournis sur 60 niveaux verticaux du sol jusqu'à 0.1 hPa avec une résolution spatiale approximative de 80 km. L'avantage d'utiliser la réanalyse atmosphérique globale ERA-Interim est qu'elle est continuellement mise à jour en temps réel. Il s'agit alors d'une configuration climatologique et de la meilleure version du modèle IFS continue et produite de manière identique sur toute la période d'étude.

### 2. Grilles horizontales et verticales

MOCAGE est un modèle stratosphérique, troposphérique et multi-échelles, pouvant traiter aussi bien le domaine globale que les domaines locaux. La concentration des principales espèces chimiques de l'atmosphère sont décrites

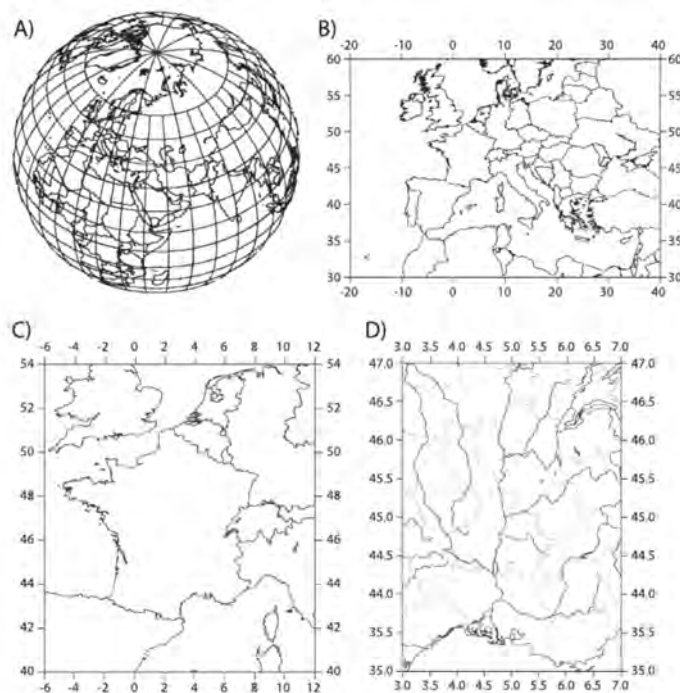


Figure 2.1: Exemple de grille multi-échelles de MOCAGE. MOCAGE a la possibilité d'effectuer des zooms afin d'augmenter la résolution horizontale sur une région d'intérêt [Dufour et al., 2005].

par MOCAGE à différentes échelles spatio-temporelles. Suivant la région considérée, la résolution horizontale sera différente. La résolution définit le nombre de points où le modèle va évaluer les tendances chimiques.

La résolution du modèle va ainsi agir sur le temps de calcul puisque plus la résolution est fine et plus le temps de calcul est long.

Le modèle MOCAGE peut être utilisé avec plusieurs domaines imbriqués allant de  $2^\circ$  à  $0.02^\circ$  (figure 2.1)

Pour notre étude, nous avons utilisé le domaine global avec une grille horizontale régulière de  $2^\circ$  de latitude par  $2^\circ$  de longitude (soit une résolution spatiale d'environ 200 km).

MOCAGE découpe également l'atmosphère sur la verticale afin de représenter les différents processus physiques de la couche limite, de la troposphère libre et de la stratosphère, en prenant en compte le relief. Deux versions existent pour MOCAGE en fonction du nombre de niveaux verticaux, celui à 47 niveaux et celui à 60 niveaux. Dans cette étude, la version de MOCAGE à 60 niveaux verticaux est utilisée (figure 2.2), étendue de la surface jusqu'à la mésosphère (0.1 hPa).

Ces niveaux verticaux, sont appelés hybrides car ils suivent les valeurs de pression à la surface et les isobares en s'éloignant du sol. Ainsi, le maillage est fin à la surface (7 niveaux dans la couche limite atmosphérique) et il est de

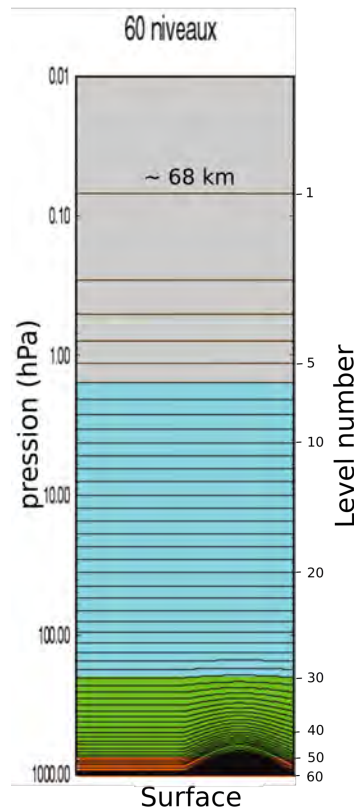


Figure 2.2: Grille verticale de MOCAGE répartie sur 60 niveaux verticaux.

plus en plus grossier en altitude. La résolution verticale du modèle varie de quelques mètres à la surface pour atteindre 800 m au niveau de l'UTLS (Upper Troposphere - Lower Stratosphere). Ces coordonnées hybrides sigma-pression permettent de mieux tenir compte des reliefs qui peuvent empêcher un flux atmosphérique de circuler, particulièrement sur l'horizontal.

### 3. Résolution du transport dans MOCAGE

Tous les CTM résolvent une équation différentielle qui décrit l'évolution dans l'espace et le temps de la concentration chimique d'une espèce. L'évolution de la concentration de l'espèce chimique peut se décomposer selon quatre processus que les CTM doivent modéliser : le transport, les émissions, le dépôt et la chimie.

Ces quatre processus sont modélisés par une équation générale dite du transport réactif :

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = F_T + F_X + (S - P) + \text{conservation de la masse} \quad (2.1)$$

Avec  $C$  le vecteur correspondant au vecteur concentration d'une espèce chimique en fonction du temps ;  $F_T$  le terme relatif au transport (le transport décrit la diffusion turbulente et l'advection qui dépend de la vitesse du vent



V) ;  $F_X$ , le forçage, relatif au bilan des productions et pertes par réactions chimiques de l'espèce ; le terme (S-P) représente le forçage chimique avec S les sources (émissions) de l'espèce et P les pertes par lessivage ou par dépôt sec. MOCAGE résoud donc sur son maillage une équation du type 2.1 pour chaque espèce.

L'équation du transport (équation 2.1) est vraie seulement s'il y a conservation de la masse, ce qui n'est pas en réalité le cas des données ERA-Interim. Cependant, les vents utilisés dans l'équation du transport sont considérés comme non divergents puisqu'il s'agit ici de tendance climatologique. D'autre part, étant donné que l'assimilation de données est ici utilisée, l'impact de la non-conservation de la masse est faible.

Les processus d'échanges avec la surface, les émissions et le dépôt, sont pris en compte et traités de manière externalisée [Michou and Peuch, 2002]. Les dépôts secs en surface sont basés sur le schéma de [Wesely, 1989], tandis que le dépôt humide (ou lessivage) est paramétrisé pour les nuages stratiformes et convectifs [Giorgi and Chameides, 1986] ; [Mari et al., 2000].

Les modèles de chimie transport doivent prendre en compte dans la résolution de l'équation :

- d'une part, le transport de grande échelle, résolu par le modèle
- d'autre part, le transport sous-maille pour lequel une paramétrisation est nécessaire.

#### (a) Le transport résolu

Trois approches différentes pour la résolution numérique existent :

- L'approche **Lagrangienne** qui étudie le mouvement du fluide à partir d'un référentiel mobile en suivant une parcelle de ce fluide. Le schéma Lagrangien suit des parcelles d'air individuelles qui sont transportées par le champ de vents tri-dimensionnels au cours du temps. Cette méthode est des plus simples mais elle est très peu utilisée en pratique pour un CTM. En effet, le schéma Lagrangien n'est pas adapté pour des représentations globales sur de longues périodes. Il faut advecter un grand nombre de parcelles d'air qui au cours du temps peuvent s'accumuler dans certaines régions du globe, laissant les autres régions sans parcelle d'air à advecter. L'autre inconvénient avec cette méthode est que l'espèce chimique est observée par parcelle d'air et non par latitude et longitude.
- L'approche **Eulérienne** est placée dans un référentiel fixe et étudie le fluide qui passe à travers le domaine d'étude. Il existe de nombreux modèles chimiques eulériens. Simplement, le pas de temps est trop réduit pour l'étude d'espèces chimiques à longue durée de vie telles que l'ozone et il est difficile de résoudre la singularité aux pôles dans une grille latitude-longitude.

Il a donc été mis au point une approche intermédiaire dite : “semi-Lagrangienne”. Le schéma semi-lagrangien utilise une grille régulière de la méthode Eulérienne et utilise l’approche Lagrangienne en suivant la parcelle de fluide arrivant sur les points de grille à chaque pas de temps.

En ce qui concerne le transport, MOCAGE résout explicitement le terme d’advection suivant le schéma semi-lagrangien. MOCAGE est basé sur la représentation semi-Lagrangienne de [Williamson and Rasch, 1989] utilisant les champs météorologiques fournis par les forçages.

#### (b) Le transport sous-maille

La convection et la diffusion turbulente, processus qui ne peuvent pas être explicitement représentés à la résolution du CTM, doivent être prises en compte. La convection joue un rôle important étant donné qu’elle transporte des constituants chimiques du sol jusqu’à la basse stratosphère en très peu de temps. Elle est négligée pour l’ozone dans ce travail de thèse, mais peut être activée à l’aide du schéma de [Tiedtke, 1989] ou bien du schéma de [Bechtold et al., 2001]. La diffusion turbulente est basée sur le schéma de Louis (1979). Ces schémas pour le transport sont détaillés et évalués dans [Josse, 2004], [Josse et al., 2004], et [Pisso et al., 2009].

### 4. Les schémas chimiques

Dans le modèle MOCAGE, l’évolution chimique des espèces (terme  $F_x$  de l’équation 2.1) peut être calculée en considérant un des quatre schémas chimiques suivants :

- le schéma **REPROBUS** adapté à la stratosphère [Lefevre et al., 1994] avec une bonne prise en compte de la chimie stratosphérique. Il contient plus d’une centaine de réactions chimiques en phase hétérogène et homogène. Il permet d’effectuer des simulations climatiques longues pour la stratosphère et la haute troposphère ;
- le schéma **RACMOBUS** , regroupant les schémas Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM, schéma pour la troposphère, [Stockwell et al., 1997] et le schéma complet REPROBUS pour la stratosphère). Ce dernier est le plus coûteux en ressources de calcul ;
- le schéma **RELACS**, REgional Lumped Atmospheric Chemical Scheme, est un schéma tropo-stratosphérique simplifié (avec 61 espèces transportées) adapté aux simulations climatiques longues. C’est un schéma complet mais encore suffisamment simplifié pour être efficace sur les calculateurs de moyenne gamme ;
- et le schéma linéaire simplifié de l’ozone, dit schéma de **CARIOLLE**, utilisé dans ce travail de thèse et détaillé dans la section suivante.

Pour plus de détails concernant le modèle MOCAGE, il est conseillé de se reporter à [Cathala, 2004] et [Michou, 2005].

## 2.2 Le schéma de CARIOLLE

Les cycles chimiques et photochimiques de production et de destruction de l’ozone stratosphérique font intervenir une quarantaine d’espèces différentes et une soixantaine de réactions chimiques. La première approche permettant de rendre compte de la chimie de l’ozone stratosphérique et de la haute troposphère, dans des modèles de grandes échelles en s’épargnant le calcul complet de ces réactions, a été développé par [Cariolle and Deque, 1986] avec : le schéma linéaire CD86, nommé plus tard, le schéma CARIOLLE. Ils développèrent un schéma simple en linéarisant l’équation de continuité (voir équation 2.1) d’ozone à partir d’un modèle photochimique 2D.

Le schéma CARIOLLE a été initialement développé pour fournir des estimations de l’ozone aux MCG sans qu’ils aient besoin d’être couplés à un CTM [Déqué et al., 1994]. Ses bons résultats ont par la suite conduit à l’utiliser avec des CTM, pour étudier les tendances d’ozone [Hadjinicolaou et al., 2005]. Le schéma linéaire de CARIOLLE est donc un schéma très stable et rapide qui convient pour l’étude de l’ozone. L’avantage de développer un schéma chimique très simplifié est de retenir les ingrédients majeurs à la chimie atmosphérique tout en évitant la complexité de l’implémentation des schémas chimiques détaillés.

Le schéma linéaire peut avoir de une à quatre variables telles que l’O<sub>3</sub> stratosphérique v2.8 (qui comprend 8 coefficients dans l’équation de continuité de l’ozone). Il a été amélioré, depuis la version v1.2 avec la nouvelle version v2a notamment dans MOCAGE [Cariolle and Teyssedre, 2007]. Cette nouvelle version inclut d’une part, une mise à jour du modèle photochimique qui génère ses coefficients, et d’autre part l’implémentation d’un schéma de destruction de l’ozone polaire en prenant en compte la température stratosphérique locale et le contenu total en chlore. Dans l’ancienne version (v1.2), la chimie hétérogène de destruction de l’ozone n’était pas considérée. Ce terme de destruction de l’ozone est activé lorsque les conditions de formation de nuages polaires stratosphériques sont rencontrées. Par conséquent, la version v2a, améliore les valeurs de production d’ozone dans la région du “trou” de la couche d’ozone.

Le schéma chimique CARIOLLE a été utilisé dans cette étude afin de minimiser le coût de calcul de la modélisation tout en assurant une cohérence dans les analyses. Cette approche du schéma linéaire CARIOLLE permet de diminuer le temps de calcul de façon remarquable : par exemple, elle utilise 20 fois moins de CPU (*Central Processing Unit* ou processeur) que requièrent les schémas complets [Cariolle and Teyssedre, 2007].

L’équation de continuité de l’ozone du schéma CARIOLLE correspond à une décomposition en série de Taylor au premier ordre autour de valeurs de référence du rapport de mélange de l’ozone, de la température et de la colonne d’ozone :

$$\frac{dr_{O_3}}{dt} = A_1 + A_2(r_{O_3} - A_3) + A_4(T - A_5) + A_6(\Sigma - A_7) + A_8 r_{O_3}$$

$$A_1 = (P - L)$$

$$A_2 = \frac{\partial(P-L)}{\partial r_{O_3}}: \text{taux de production et de destruction}$$

$$A_3, r_{O_3} : \text{rapport de mélange}$$

$$A_4 = \frac{\partial(P-L)}{\partial T}$$

$$A_5, T : \text{température}$$

$$A_6 = \frac{\partial(P-L)}{\partial \Sigma}$$

$$A_7, \Sigma : \text{la colonne totale d'ozone}$$

$$A_8 : \text{terme de chimie hétérogène}$$

Les champs  $A_x$  de référence sont des moyennes zonales mensuelles issues de l'intégration d'un modèle 2D photochimique (voir [Cariolle and Teyssedre, 2007]).

[Geer et al., 2007] ont comparé le schéma CARIOLLE à d'autres schémas linéaires et ont démontré qu'il génère de bonnes simulations dans la plupart des situations. Le schéma CARIOLLE a ainsi de bons résultats dans la troposphère libre et la stratosphère. Cependant, ses performances sont dégradées dans les plus basses couches de l'atmosphère (où il est usuellement remplacé par une relaxation vers sa climatologie initiale). Combinée avec l'assimilation de mesures stratosphériques, cette paramétrisation produit des résultats similaires à ceux obtenus avec des schémas chimiques plus complets [Geer et al., 2006].

Le schéma linéaire CARIOLLE est adapté aux situations où les sources et les puits de l'ozone et de ses précurseurs ne sont pas localisés. C'est le cas en particulier dans la haute troposphère et la stratosphère.

Dans la basse troposphère au-dessus des continents, et en particulier dans les zones de fortes émissions de CO, NO<sub>x</sub> et de COV, les conditions régionales sont très éloignées de celles représentées à travers les coefficients zonaux de la paramétrisation. En conséquence le schéma n'est pas, a priori, adapté pour l'étude de l'ozone troposphérique dans toutes les conditions.

Néanmoins, nous l'avons employé dans notre étude car ainsi nous nous assurons que les informations, conduisant dans le processus d'assimilation à l'apparition de structures d'ozone dans la troposphère, proviennent uniquement des données assimilées.

Les simulations seront donc d'autant plus probantes que la densité et la précision des observations assimilées sont grandes, ce qui comme nous le verrons au chapitre 5, est bien le cas des données ozone du capteur IASI.



## Chapitre 3

# Les satellites : de la technique de mesure vers l'algorithme de restitution

Il existe un grand nombre de composés atmosphériques dont les concentrations sont très variables dans l'espace et dans le temps. Il est nécessaire pour l'étude de ces composés d'avoir des mesures spécifiques et à haute résolution spatiale et temporelle. Deux types de mesures peuvent être réalisés : *in situ* depuis le sol ou par télédétection depuis l'espace.

Les processus chimiques, dynamiques et radiatifs de l'atmosphère terrestre se produisent à différentes échelles : de celle locale (pollutions en zone urbaines) à celle globale (évolution des poussières désertiques ou des composés chimiques). Les mesures réalisées depuis le sol ou provenant des campagnes ballons ou aéroportées, ont des couvertures sporadiques, ne permettant pas d'appréhender globalement et précisément les processus. Les mesures satellitaires, au contraire, ont une couverture planétaire et des échelles temporelles quotidiennes en moyenne. Elles permettent alors d'accéder à une cartographie détaillée sur les constituants chimiques et les paramètres atmosphériques terrestres mais avec de faibles précisions sur la verticale.

L'interaction du rayonnement électromagnétique à travers l'atmosphère avec les espèces chimiques atmosphériques fournit des signatures spectrales. Ces spectres sont la principale source d'information sur la composition atmosphérique terrestre. Le rayonnement interagit avec les composants atmosphériques par absorption, diffusion, et émission.

La télédétection atmosphérique est l'étude à distance de l'atmosphère à partir des caractéristiques du rayonnement qui s'y propage. Ainsi, en mesurant le rayonnement, une information indirecte sur les concentrations des espèces chimiques de l'atmosphère est obtenue.

Dans cette thèse, trois différents instruments spatiaux ont été utilisés : l'Ozone Monitoring Instrument (OMI), le Microwave Limb Sounder (MLS) et l'Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI). Avant de prendre connaissance des spécificités de chacun de ces instruments, les éléments clés dans la compréhension de la télédétection spatiale seront énoncés. En premier lieu, les sources de rayonnement atmosphérique sont présentées. Puis, une description est faite sur l'équation du

---

transfert radiatif, nécessaire dans le bilan des processus radiatifs affectant le rayonnement en un point de l'atmosphère et permettant de simuler les spectres mesurés par les instruments de télédétection. En second lieu, les instruments spatiaux sont définis, et les caractéristiques de ceux utilisés pour cette étude sont présentés. Enfin, la méthode d'inversion, permettant de passer des spectres atmosphériques aux concentrations atmosphériques, est expliquée.

## 3.1 Télédétection spatiale

### 3.1.1 Les sources de rayonnement

Suivant l'origine du rayonnement mesuré, deux sortes d'instruments de télédétection spatiale existent : la télédétection passive et la télédétection active. La télédétection active utilise un rayonnement artificiel produit par l'instrument lui-même. Ce mode de source artificiel demande une puissance importante par l'instrument et est par conséquent peu utilisé pour les satellites mesurant la composition atmosphérique. La télédétection passive, quand à elle, utilise un rayonnement d'origine naturelle comme le Soleil, l'émission thermique de la Terre et de l'atmosphère ou encore provenant de la Lune ou des étoiles. Ces sources de rayonnement demandent très peu de puissance par l'instrument satellitaire. Dans le domaine spatial lié à la chimie atmosphérique, la télédétection active est moins utilisée, alors que les techniques de télédétection passive sont utilisées depuis plus de 30 ans.

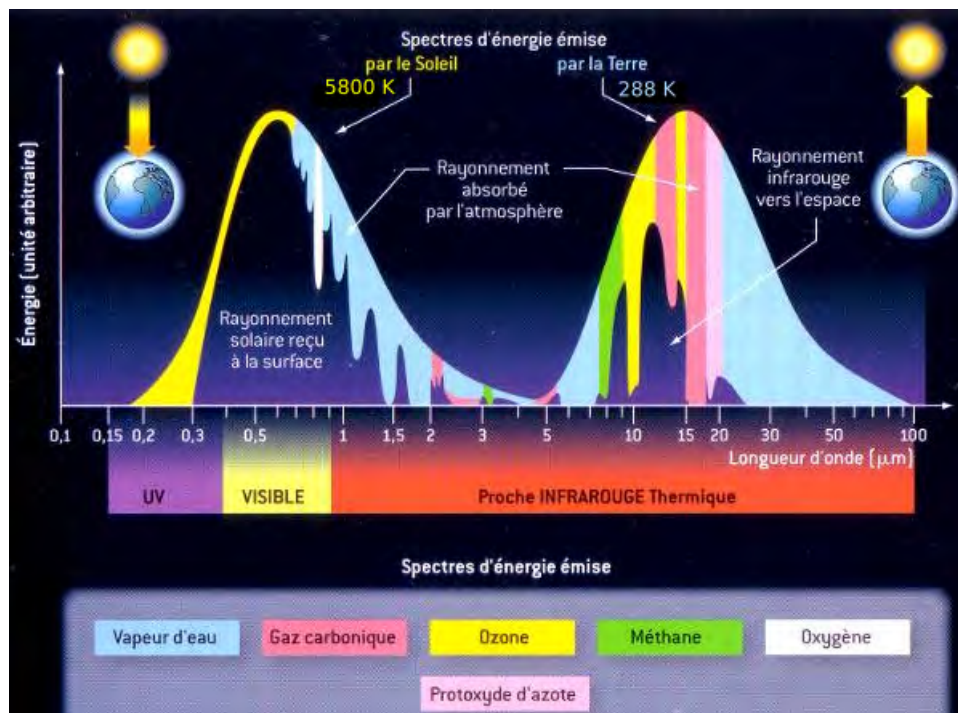


Figure 3.1: Distribution du rayonnement provenant du soleil et de la Terre et représentation simplifiée de l'absorption par les gaz à effet de serre. (*omer7a.obs – mip.fr*)

La surface terrestre absorbe la radiation du soleil, entraînant l'augmentation de sa température. Or tout corps ayant dépassé le zéro absolu ( $-273.15\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) émet du rayonnement électromagnétique pour dissiper une partie de son énergie. De ce fait, le Soleil et la Terre émettent un rayonnement électromagnétique comparable à celui d'un corps noir. Un corps noir est un corps qui absorbe tout le rayonnement qu'il reçoit et émet en retour, pour une longueur d'onde donnée, un rayonnement thermique de manière à équilibrer le bilan radiatif. La distribution spectrale de son émission dépend uniquement de sa température et obéit à la loi de Planck (1901) :



$$B(T) = \frac{2h\nu^3}{c^2(\exp \frac{h\nu}{kT} - 1)} = \frac{2hc^2}{\lambda^5(\exp \frac{hc}{k\lambda T} - 1)} : \quad (3.1)$$

correspondant à l'intensité de la radiation émise par un corps noir où  $h = 6.62 \times 10^{-34} \text{ m}^2 \cdot \text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$  est la constante de Planck,  $k = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$  la constante de Boltzmann,  $c = 2.998 \times 10^8 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  la vitesse de la lumière,  $\nu$  la fréquence du rayonnement et  $T$  la température.

La distribution spectrale du rayonnement solaire correspond à celle d'un corps noir de température égale environ à 5800 K (figure 3.1). Cette distribution spectrale montre une série de raies d'absorption et d'émission due aux éléments chimiques présents dans son atmosphère. L'émission solaire a lieu de l'ultraviolet au proche infrarouge et est maximale dans le visible.

L'émission terrestre s'apparente à un corps noir d'une température de 288 K et est maximale dans l'infrarouge thermique (figure 3.1).

Les domaines de longueur d'onde des émissions entre le Soleil et la Terre étant bien distincts, il est possible de différencier aisément chacune des sources.

Il existe différents types d'interactions du rayonnement électromagnétique (provenant du Soleil ou de la surface terrestre) avec les constituants de l'atmosphère, tels que l'absorption moléculaire, l'émission, et la diffusion. Tous les processus pouvant affecter le rayonnement lors de sa traversée de l'atmosphère sont pris en compte dans l'équation du transfert radiatif.

### 3.1.2 La théorie du transfert radiatif

L'atmosphère est considérée comme un milieu diffusant et absorbant. L'équation du transfert radiatif est une équation bilan de type équation de Boltzmann. Elle représente, en un point de l'atmosphère, la propagation de "l'intensité spectrale" d'un rayonnement selon une direction. Tous les éléments interagissent avec l'onde de manière indépendante et incohérente. Il n'existe alors pas d'interférence. L'intensité spectrale est également caractérisée par la **luminance spectrale**  $L_\lambda$  ou **spectral radiance** en anglais, d'unité le  $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \text{sr}^{-1}$ . Le transfert radiatif dépend du domaine spectral et donc de la longueur d'onde  $\lambda$ . Par ailleurs, le mot "radiance" étant le plus souvent employé par abus de langage, il sera mentionné tout le long de cette thèse au lieu du mot "luminance".

Afin d'interpréter les informations plus facilement, les mesures de radiances sont souvent converties en température de brillance. La température de brillance correspond à la température d'un corps noir qui émettrait une radiation à une longueur d'onde donnée.

Soit un élément atmosphérique ou une couche atmosphérique d'épaisseur  $dz$ , et la propagation de la luminance selon la direction de chemin optique  $ds = -\frac{dz}{\cos(\theta)}$  avec  $\theta$  l'angle compris entre la direction du rayon et la normale à la surface du

corps étudié. Le bilan des processus affectant l'onde traversant l'atmosphère dans la direction  $\vec{s}$  s'écrit :

$$\frac{dL}{ds} = -k_a L - k_d L + k_a B + k_d J \quad (3.2)$$

avec  $k_a$  le coefficient d'absorption et  $k_d$  le coefficient de diffusion, tous deux exprimés en  $\text{cm}^{-1}$ . Les termes  $-k_a L$  et  $-k_d L$  correspondent respectivement aux pertes de rayonnement par absorption et par diffusion. Le terme  $k_a B$  correspond à l'émission thermique provenant d'un constituant situé dans la couche d'épaisseur  $ds$ , où  $B$  est la fonction de Planck (voir l'équation 3.1). Le terme  $k_d J$  correspond à la diffusion de rayonnement par le constituant situé dans  $ds$ , de rayonnement incident provenant de directions différentes ( $J$ ). Pour résumer, les termes à droite de l'équation correspondent à la description de l'atmosphère et dépendent de l'état de l'atmosphère alors que le terme de gauche représente la mesure du satellite. Plusieurs hypothèses sont établies, afin de simplifier et de résoudre l'équation du transfert radiatif, adaptées aux conditions météorologiques à étudier (elles sont présentées dans l'Annexe A). Après plusieurs étapes de calculs présentées dans l'Annexe A, l'équation du transfert radiatif 3.2 devient en condition de ciel clair :

$$L_\nu = L(0)\tau(0) + \int_0^\infty B(T(z), \nu) \frac{d\tau(z)}{dz} dz \quad (3.3)$$

avec  $\tau$  la transmittance dépendant de la fréquence  $\nu$  et de l'altitude  $z$  et  $L_\nu$  étant la radiance.

Dans l'équation, le terme  $\frac{d\tau(z)}{dz} = H(z)$  se nomme la fonction poids. Cette moyenne verticale est connue comme étant la fonction  $H(z)$ , nommée également l'opérateur d'observation.

Elle permet de passer des profils aux radiances. Plusieurs cas peuvent se présenter concernant la forme de la fonction poids.

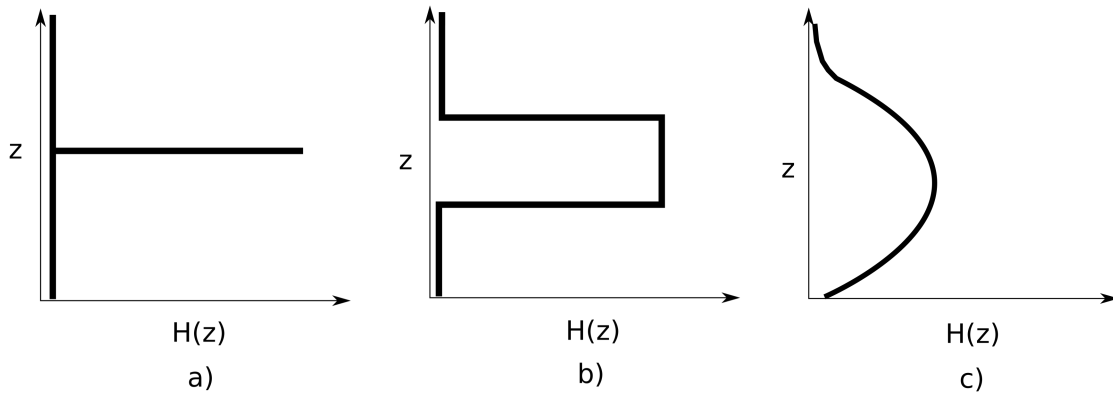


Figure 3.2: Représentation schématique de fonctions poids

1. Si la fonction de poids est une fonction delta (figure 3.2a), cela signifie que les radiances mesurées dans un canal donné sont sensibles à la température pour un seul niveau dans l'atmosphère.

2. Si la fonction poids est une fonction boîte (figure 3.2b), cela signifie que les radiances mesurées dans un canal donné sont seulement sensibles à la température entre deux niveaux discrets de l'atmosphère.

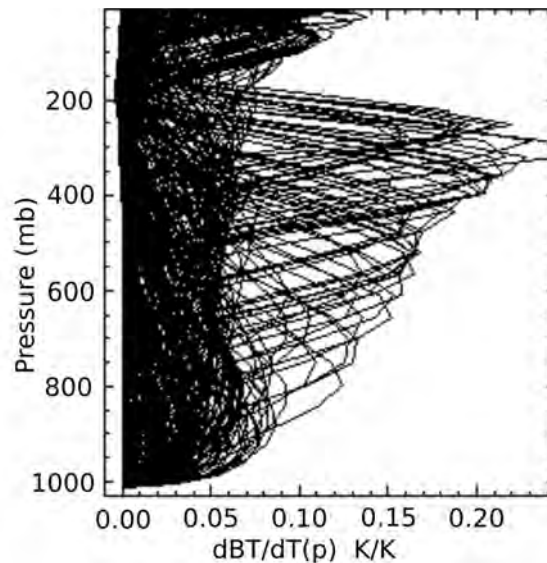


Figure 3.3: Exemple de fonctions poids pour IASI qui comprend 8463 canaux répartis linéairement entre 645 et 2760  $\text{cm}^{-1}$ . En ordonnée, il s'agit de la pression en millibar, et en abscisse, de la dérivée de température de brillance par le profil de température.

3. Les fonctions de poids réelles de l'atmosphère ont une forme sinusoïdale (figure 3.2c). Au sommet de l'atmosphère, très peu de radiances sont émises. La plupart sont émises dans les basses couches atmosphériques, mais très peu atteignent le sommet de l'atmosphère dû à l'absorption atmosphérique. À un certain niveau d'altitude, il existe une balance optimale entre la quantité de radiance émise et la quantité qui atteint le sommet de l'atmosphère.

L'altitude pour laquelle un pic apparaît dans la fonction poids, dépend de la force d'absorption pour un canal donné. L'absorption atmosphérique varie suivant la verticale et est fonction de la longueur d'onde. En sélectionnant un nombre de canaux, cela permet d'échantillonner et de restituer des informations sur la température et la composition atmosphérique à différentes altitudes (figure 3.3).

Si l'absorbeur a une concentration connue, c'est-à-dire que l'opérateur d'observation  $H(z)$  est connu, alors la radiance mesurée est essentiellement une moyenne pondérée des profils de température atmosphérique et le profil de température peut être restitué à partir de  $L(\nu)$ . Au contraire, si la température est connue, alors la concentration de l'absorbeur peut être restituée. En réalité, les profils de température et de concentration de l'absorbeur à étudier sont inconnus, rendant la restitution compliquée. La restitution est rendue compliquée également par la diversité des composés chimiques présents dans l'atmosphère, dont certains absorbent et diffusent le rayonnement, et qui absorbent soit dans l'ultraviolet, soit dans l'infrarouge

ou dans le visible. Puis, il faut également tenir compte de l'existence d'une température différente pour chaque couche de l'atmosphère, rendant le problème encore plus complexe. Il devient alors possible de dissocier et ainsi de restituer à la fois l'information sur la température et sur la concentration de l'absorbeur.

### 3.1.3 Les codes de transfert radiatif : le modèle RTTOV

Les instruments de télédétection mesurent, dans une certaine gamme de longueur d'onde, les radiances (intensités d'un rayonnement électromagnétique, c'est-à-dire les spectres de températures de brillance) traversant l'atmosphère. Il s'agit donc de mesurer l'action de la concentration des gaz atmosphériques sur le rayonnement. Les modèles de transfert radiatif permettent de simuler la radiation mesurée par le satellite en fonction de l'état atmosphérique.

Le code de transfert radiatif RTTOV (Radiative Transfert for TOVS, [Saunders et al., 1999b, Saunders et al., 1999a]) permet de calculer rapidement et précisément, à partir d'un profil vertical atmosphérique, les radiances dans l'infrarouge ou les micro-ondes. Il utilise une linéarisation pour obtenir les modèles nécessaires à son fonctionnement tangent-linéaire, adjoint et jacobiens [Saunders et al., 2013]. Il a été développé par Météo France, l'UKMO (UK Met Office) et ECMWF.

Sa rapidité provient des matrices de coefficients, qui sont calculées pour chaque instrument afin de ne pas avoir à recalculer le transfert radiatif pour chaque canal.

La simulation rapide de RTTOV nécessite une paramétrisation de l'absorption gazeuse. Les transmittances gazeuses sont évaluées par les modèles rapides sur une grille de pression et par bande spectrale. Elles sont estimées à partir des épaisseurs optiques qui sont paramétrées par régressions linéaires de variables "prédicteurs" établies par des modèles raie-par-raie (*line-by-line* en anglais [Clough et al., 2005], modèles précis mais très lents). RTTOV peut, pour IASI, reproduire des radiances d'une précision inférieure à 0.1 K [Matricardi, 2009]. Pour passer de l'état de l'atmosphère aux radiances mesurées par satellites, il s'agit du problème dit direct. Afin de résoudre le problème direct, il est nécessaire d'utiliser l'opérateur d'observation ou la fonction poids. L'opérateur d'observation est calculé, dans notre cas, par RTTOV.

Mesurer les radiances dans une vaste gamme de fréquences/canaux améliore l'échantillonnage vertical et donc la résolution.

### 3.1.4 Les instruments spatiaux

Les mesures des instruments spatiaux, dépendent des caractéristiques des instruments eux-même et des paramètres orbitaux du satellite à bord duquel est embarqué l'instrument.

Suivant leur orbite, les satellites peuvent être rangés en 2 catégories (figure 3.4):

- **Les satellites géostationnaires** tournent à la même vitesse que la Terre, en orbite à 36 000 km d'altitude environ. Ils visent toujours la même région, ce qui permet de suivre l'évolution de phénomènes météorologiques dans le temps en une



Figure 3.4: Quelques satellites différenciés par leur orbite géostationnaire (orbite jaune) et défilante (orbite rouge), [www.eumetsat.int](http://www.eumetsat.int).

région donnée. Il est possible d'avoir une couverture complète et permanente du globe avec plusieurs satellites géostationnaires à l'exception des zones polaires.

- **Les satellites défilants**, en mouvement autour de la Terre, ont une orbite entre 600 km et 800 km d'altitude. Ils survolent une même zone deux fois par jour. Ils peuvent mesurer avec une plus grande précision les régions polaires contrairement aux satellites géostationnaires.

## Propriétés orbitales

Les différentes propriétés orbitales, associées aux satellites, sont énumérées et rapidement détaillées ci-dessous.

### 1. Inclinaison et Altitude

L'inclinaison du satellite est calculée par rapport au plan équatorial terrestre et correspond à l'angle entre le satellite et ce plan. Cet angle définit la nature de l'orbite. Ainsi, si cet angle est compris entre  $80^\circ$  et  $100^\circ$ , l'orbite est appelée quasi-polaire étant donné que le satellite peut voir les deux pôles terrestres.

Les traces au sol des satellites défilants peuvent être concentrées sur les latitudes tropicales ou remonter vers les hautes latitudes jusqu'à proximité d'un pôle. Il s'agit de satellite dit en orbite polaire. Si leur trajectoire est en phase avec le soleil, ils sont dits héliosynchrones.

### 2. Crossing time

Pour définir ce qu'est le crossing time, deux termes doivent être introduit :

- *le temps local* aussi appelé mean solar time (MST) défini comme :  $MST = UT + long/15$  où  $UT$  est le temps universel au méridien de Greenwich (en heures) et  $long$  est la longitude en degrés.

- Les *nodes* qui correspondent à l'intersection entre l'orbite du satellite et le plan équatorial terrestre. Il en existe deux : l'orbite montante (*ascending node*), le point où le satellite passe de l'Hémisphère Sud à l'Hémisphère Nord et à l'inverse l'orbite descendante (*descending node*).

Les satellites passent au-dessus de l'équateur au temps local solaire chaque jour en orbite montante ou descendante. Il s'agit du crossing time équatorial souvent utilisé pour définir l'orbite d'un satellite.

### Propriétés instrumentales

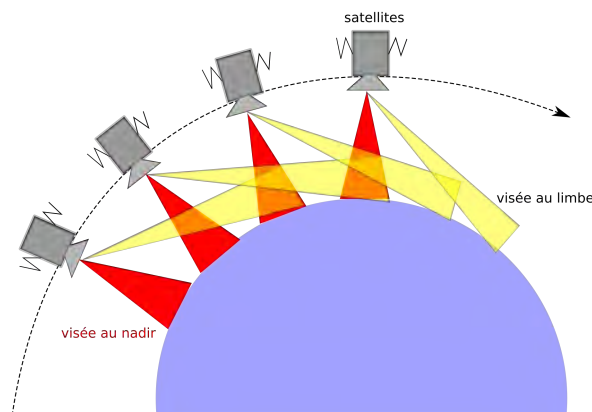


Figure 3.5: Visées au nadir et au limbe.

Il existe deux principales familles de visée pour des instruments à bord de satellites (figure 3.5) :

- les visées au **nadir**, pour lesquelles toute visée d'instrument atteint la surface terrestre, comme celle de l'instrument IASI et dont les visées fournissent des renseignements sur la colonne atmosphérique ;
- et les visées au **limbe**, pour lesquelles le rayonnement ne heurte pas la surface de la terre, comme l'instrument MLS, renseignant les hautes couches de l'atmosphère de la haute troposphère à la mésosphère.

## 3.2 Instruments spatiaux utilisés

### 3.2.1 À bord du satellite AURA

Le satellite AURA a été lancé par la NASA le 15 juillet 2004. Il fait partie du système d'observation de la Terre, mis en place par la NASA, et en est le troisième satellite au sein du train de satellites *A-Train* (figure 3.7). Il a pour mission d'étudier la qualité de l'air, l'ozone stratosphérique et l'évolution du climat.

AURA est en orbite polaire et héliosynchrone à 705 km d'altitude. Il a une période de 100 minutes et passe au-dessus de l'équateur (crossing time) entre 13h40 et 13h50, heure locale. Un exemple de couverture spatiale réalisée par AURA dans la journée du 27 septembre 2017, à 13h17 UTC, est représenté dans la figure 3.7.

La répartition horizontale des observations du satellite AURA se présente comme suit : deux observations successives des instruments à bord sont espacées de  $1.5^\circ$  de longitude.

Quatre instruments sont embarqués à bord de ce satellite mais seulement deux ont été utilisés : le radiomètre au limbe en hyperfréquence MLS et l'instrument OMI qui sera utilisé seulement en tant qu'instrument de validation pour les chapitres 6 et 7. Ils sont tous complémentaires et chacun possède sa spécificité. Les instruments à bord d'AURA, fournissent des observations journalières globales de la couche d'ozone atmosphérique, de la qualité de l'air et de paramètres clés sur la variabilité du climat.



Figure 3.6: Représentation artistique du satellite AURA. <https://aura.gsfc.nasa.gov/>

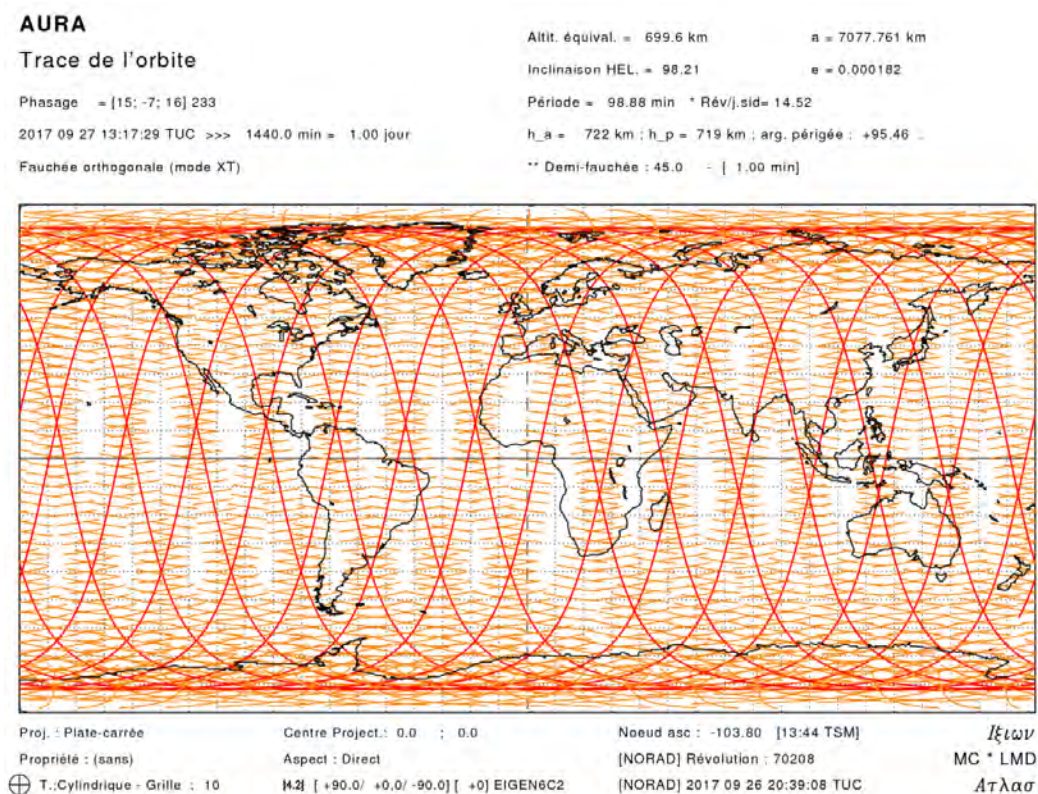


Figure 3.7: Trace au sol du satellite AURA le 27 septembre 2017 avec fauchées perpendiculaires à la trace. La fauchée correspond à la longueur de la ligne de mesure au sol. <http://clim.serv.ipsl.polytechnique.fr/>



### L'instrument OMI

OMI (Ozone Monitoring Instrument) vise la surveillance de la couche d'ozone stratosphérique mais aussi des composants tels que NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> et les différents types d'aérosols. OMI est un spectromètre à imageur hyperspectral qui mesure la lumière rétrodiffusée et réfléchi du soleil, avec un champ de vue d'angle 114°. Ce sondeur possède un balayage sur la surface terrestre de 2600 km de largeur, suffisante pour obtenir une couverture spatiale globale en un jour.

OMI comprend deux spectromètres, l'un dans l'ultraviolet et l'autre dans le visible. Il réalise des mesures spectrales dans l'ultraviolet (270 – 314 nm ; 306 – 380 nm) et dans le visible (350 – 500 nm) avec une résolution de 0.5 nm environ [Levelt et al., 2006]. OMI fournit des mesures avec une couverture globale journalière et une résolution spatiale très haute dont les pixels <sup>1</sup> au nadir sont des rectangles de 13 km par 24 km [Dobber et al., 2006] et augmente le long de la fauchée pour atteindre des surfaces de 13 × 128 km<sup>2</sup> [Levelt et al., 2006].

OMI permet de distinguer les différents types d'aérosols de l'atmosphère (fumée, poussières, sulfates), ainsi que les colonnes totales des gaz traces tels que l'ozone.

La colonne totale d'ozone de OMI a été obtenue par l'algorithme OMI-TOMS. OMI-TOMS est basé sur l'algorithme TOMS version 8 (OMI Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD), [Bhartia, 2002]) développé au GSFC (Goddard Space Flight Center). Le principe de cet algorithme est d'utiliser seulement deux longueurs d'onde. L'une à 331.2 nm où l'absorption par l'ozone est faible, afin d'estimer la présence de nuages. L'autre à 317.5 nm afin d'estimer la quantité d'ozone. L'algorithme de restitution OMI-TOMS a montré une bonne correction des erreurs liées aux nuages améliorant ainsi les restitutions d'ozone [Kroon et al., 2008]. Les erreurs de restitutions OMI varient entre 6 % et 35 % dans la troposphère [Liu et al., 2010].

Le site web fournit plus d'information sur les restitutions OMI-TOMS :

[http://toms.gsfc.nasa.gov/version8/v8toms\\_atbd.pdf](http://toms.gsfc.nasa.gov/version8/v8toms_atbd.pdf).

### L'instrument MLS

L'instrument MLS (Microwave Limb Sounder), également utilisé pour ce travail de thèse, mesure les radiances émises dans le domaine micro-ondes et fournit des profils verticaux des constituants chimiques depuis la haute troposphère jusqu'à la mésosphère. Il restitue l'ozone entre 13 km et 70 km d'altitude. MLS est un radiomètre qui mesure aux limbes les émissions micro-ondes des gaz atmosphériques dans cinq larges bandes spectrales. Ces bandes de fréquences sont centrées autour de 118 GHz, 190 GHz, 240 GHz, 640 GHz, et 2.5 THz. MLS mesure le profil des gaz traces avec une résolution verticale de 3 km. MLS fait partie des instruments uniques pouvant mesurer les gaz traces en présence de nuages de glaces et d'aérosols volcaniques. Il fournit plus de 2500 profils verticaux par jour et réalise plus d'observations aux latitudes supérieures à 60° qu'aux autres latitudes. Sa grande précision dans la stratosphère permet d'observer des échanges dynamiques pouvant exister entre la stratosphère et la troposphère (voir section 1.2).

---

<sup>1</sup>Le pixel correspond à chacune des cellules de la matrice d'analyse



Les données d’ozone MLS v4.2 ont été utilisées (<http://mls.jpl.nasa.gov/>). Des améliorations ont été apportées à la version v4.2, comparée aux versions précédentes v3.3/v3.4, concernant une importante réduction des erreurs dues à l’impact des nuages sur l’ozone. Pour plus d’information, il est conseillé de se reporter au document de [Livesey et al., 2016]. Dans la stratosphère, les données d’ozone de MLS possèdent de faibles biais, avec une erreur aléatoire de l’ordre de 5 % [Froidevaux et al., 2008]. Dans l’UTLS et particulièrement pour 215 hPa, l’erreur y est plus grande avec des valeurs d’environ 20 à 40 % [Jiang et al., 2007, Froidevaux et al., 2008, Livesey et al., 2008]. De possibles biais apparaissent dans les restitutions MLS de l’ordre de 4 % pour les profils d’ozone MLS intégrés jusqu’à 100, 147 et 215 hPa [Livesey et al., 2017]. Pour les analyses effectuées au sein de ces travaux, les données MLS utilisées ont donc été prises entre 12.12 hPa et 177.83 hPa.

### 3.2.2 À bord du satellite Metop-A

Le *Centre National d’Etudes Spatiales* (CNES) et l’*European organisation for the exploitation of METeorological SATellites* (EUMETSAT) ont développé conjointement un sondeur satellitaire infrarouge à haute résolution pour répondre aux besoins de la météorologie opérationnelle.

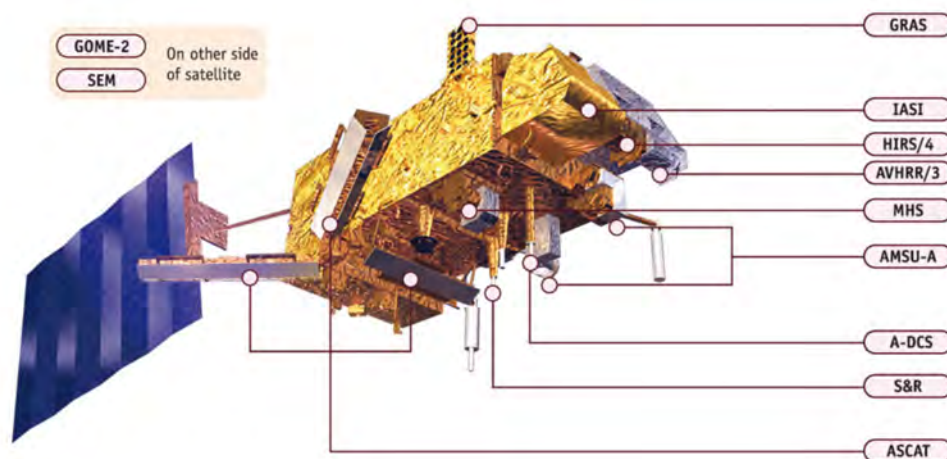


Figure 3.8: Vue de profil du satellite Metop-A et de ses instruments. <http://www.eumetsat.int/>.

Ce sondeur appelé *Infrared Atmospheric Sounding Interferometer* (IASI), se trouve à bord des satellites défilants Metop (METeorology Operational). Les satellites Metop sont des satellites météorologiques à orbite polaire mis en œuvre par EUMETSAT *Polar System* (EPS). Plusieurs instruments pour l’observation de la planète se trouvent sur la plateforme du satellite Metop (figure 3.8), complété par un système de communication entre eux afin de fournir des observations détaillées de l’atmosphère, des océans et des continents à l’échelle globale.

Metop A et B ont été lancés à bord des fusées Soyuz-2-1A (Soyuz-2/Fregat) le 19 octobre 2006 et le 17 septembre 2012 depuis la base de Baïkonur au Kazakhstan.

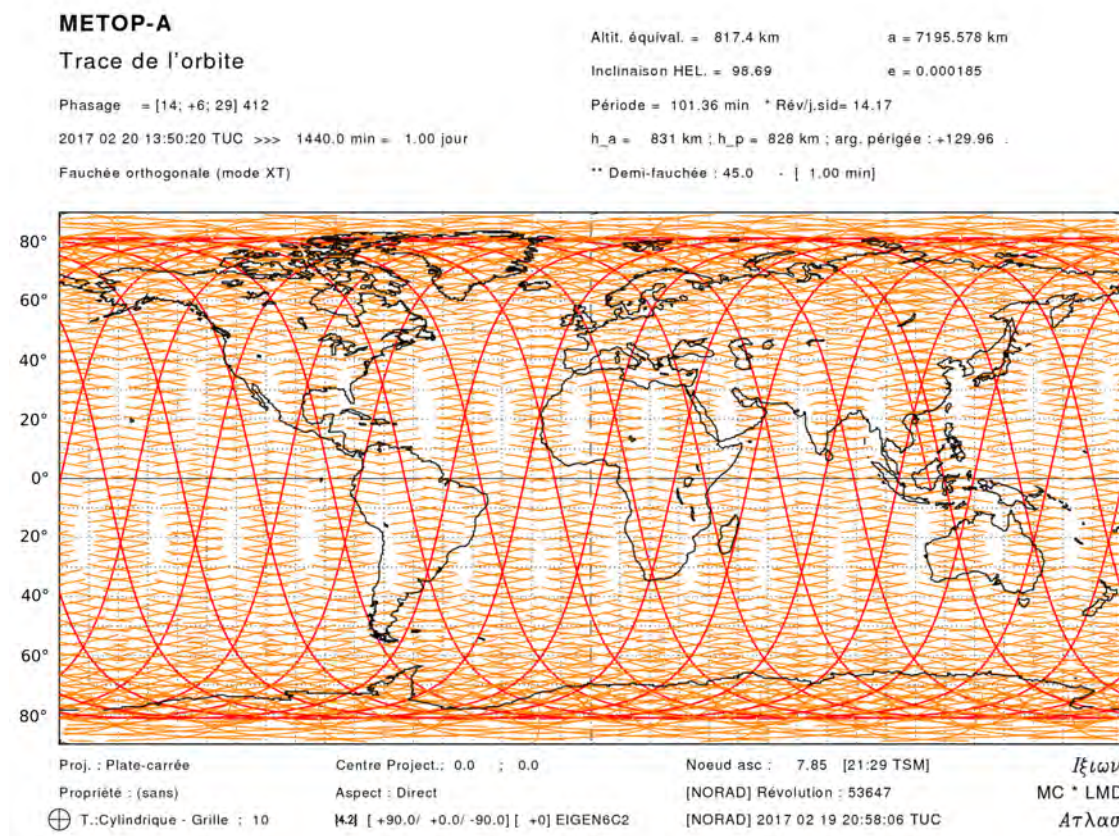


Figure 3.9: Trace au sol du satellite Metop-A le 20 février 2017 avec fauchées orthogonales.  
<http://climserv.ipsl.polytechnique.fr/>

Metop C est prévu pour 2018. Metop-A a une orbite quasi-polaire, avec une inclinaison orbitale de  $98.72^\circ$ , ce qui lui permet de donner des informations sur les deux pôles. En raison de la répartition horizontale des fauchées perpendiculaire à la trace (nadir), c'est-à-dire la projection du satellite sur le sol, Metop-A présente des manques de données au niveau de l'équateur (cf figure 3.9). Elles peuvent cependant être comblées en utilisant Metop-B. De plus, Metop est situé à 821 km. Cette altitude fait partie des orbites satellitaires basses, inférieure à 1500 km qui correspond au Low Earth Orbit (LEO). Pour Metop-A, l'orbite montante croise l'Équateur autour de 21h30 heure locale (MST). L'orbite descendante passe 12h plus tôt, à 9h30 heure locale solaire. La période orbitale des satellites Metop est d'environ 101 minutes pour revenir au périgée (extrema de l'orbite ovale le plus proche de la terre). Cela signifie qu'ils parcourent 14 périodes orbitales en une journée. Les missions Metop répètent leur orbite de 412 révolutions tous les 29 jours.

### Objectifs et caractéristiques de IASI

Les mesures de IASI sont effectuées par télédétection infrarouge passive. C'est-à-dire que la source de rayonnement est naturelle. Pour IASI, le rayonnement provient de l'atmosphère et de la surface terrestre.

### 1. Contexte et objectifs scientifiques

En collaboration avec l'EUMETSAT, le CNES a développé l'instrument IASI. La communauté météorologique opérationnelle et la communauté de recherche atmosphérique obtiennent de IASI des profils verticaux de température et d'humidité ainsi que des données sur les gaz traces et des radiances en ciel clair à l'échelle globale. La précision des mesures IASI aux endroits où les mesures radiométriques sont exploitables, c'est-à-dire dans les régions de ciel clair ou partiellement nuageux, est de l'ordre de :

- pour la température, précision absolue de 1 K et résolution verticale de 1 km ;
- pour l'humidité spécifique, précision relative de 10 % et résolution verticale de 1 km dans la troposphère.

IASI permet la surveillance de l'évolution des gaz traces. La précision des contenus intégrés sur la verticale est meilleure que 10 % pour l'ozone [Cracknell and Varotsos, 2012]. IASI permet aussi de déterminer les températures de surface des océans et des continents, et enfin il contribue à l'étude des interactions entre les nuages et le rayonnement atmosphérique.

### 2. Caractéristiques radiométriques

Afin d'effectuer des mesures précises et à haute résolution verticale, il est essentiel d'avoir une résolution spectrale fine et une très bonne qualité radiométrique du sondeur. Les propriétés d'absorption, influençant les fonctions poids, définissent les régions spectrales dans lesquelles il y a de l'information disponible et donc les régions spectrales à mesurer.

L'instrument IASI couvre une large gamme spectrale, allant de l'IR thermique ( $3.62 \mu\text{m}$ ,  $2760 \text{ cm}^{-1}$ ) c'est-à-dire de la fin de la fenêtre de transmission atmosphérique jusqu'à  $15.5 \mu\text{m}$  ( $645 \text{ cm}^{-1}$ ) correspondant à la bande d'absorption du  $\text{CO}_2$  (figure 3.10).

IASI mesure le rayonnement atmosphérique dans 8463 canaux avec une résolution spectrale de  $0.25 \text{ cm}^{-1}$ .

La résolution spectrale représente l'espacement des raies d'absorption. Pour IASI, la résolution spectrale avant apodisation est de  $0.25 \text{ cm}^{-1}$  et elle est de  $0.5 \text{ cm}^{-1}$  après apodisation. Le terme apodisation signifie la suppression de bruit (des pieds) de la fonction de réponse spectrale de IASI, mais aussi que la résolution spectrale est alors diminuée.

L'erreur sur la détermination de la température d'une cible atmosphérique est inférieure à 0.1 K. Cette température définit le bruit de IASI.

N'ayant pas de détecteur infrarouge permettant de couvrir l'ensemble du domaine spectral de IASI et sachant que, lorsque le nombre d'onde augmente, l'utilisation d'un seul détecteur pour tout le domaine limite la qualité de radiances, le rayonnement sortant de l'interféromètre a alors été divisé en trois bandes spectrales. Ces trois bandes spectrales sont :  $645 - 1210 \text{ cm}^{-1}$  contribuant à la restitution des profils de température et d'ozone,  $1210 - 2000 \text{ cm}^{-1}$  contribuant à la restitution d'humidité et de quelques gaz traces et  $2000 - 2760 \text{ cm}^{-1}$  pour la restitution de la température et de quelques gaz traces.

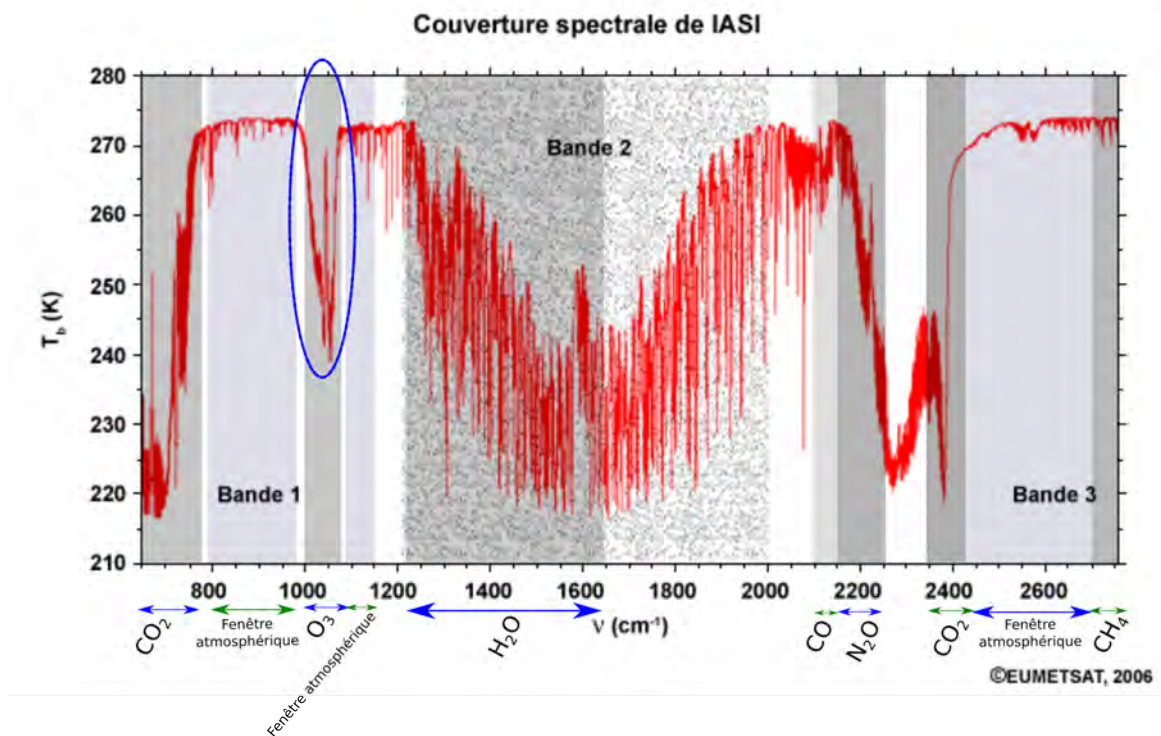


Figure 3.10: Principales régions spectrales utilisées par l'instrument IASI. La bande spectrale de l'ozone est entourée en bleu. Si le nombre d'onde  $n$  est exprimé en  $\text{cm}^{-1}$  et la longueur d'onde  $\lambda$  en  $\mu\text{m}$ , alors la relation liant ces deux variables s'écrit :  $n(\text{cm}^{-1}) = \frac{10^4}{\lambda(\mu\text{m})}$

### 3. Caractéristiques géométriques

IASI possède un capteur mobile qui utilise un mode orthogonal de balayage par rapport à la trace au sol du satellite Metop (figure 3.11).

Le balayage est rapide entre chaque visée mais un arrêt s'effectue pendant la visée afin d'acquérir l'interférogramme (mesure de l'intensité du faisceau de IASI). Sur la ligne de mesure, il y a 15 visées symétriques de chaque côté du nadir, écartées d'environ  $3.3^\circ$ . L'angle de scan de IASI est d'environ  $48.3^\circ$ . Il scanne son balayage en 8 secondes. Sachant que Metop-A se situe à une orbite d'altitude 840 km environ, la fauchée de IASI (longueur de la ligne de mesure au sol) est de 2 200 km environ avec un total de 120 pixels. Chaque cellule de la matrice d'analyse (visée) correspond à un pixel circulaire de 18 km de diamètre.

IASI permet d'obtenir une couverture globale de la terre, deux fois par jour.

### 4. Description de l'interféromètre de IASI

Le sujet de thèse ne portant pas sur le fonctionnement détaillé de l'instrument IASI, le paragraphe suivant décrit de manière simplifiée comment sont obtenues les données atmosphériques de IASI.

Il existe deux types de spectromètres : les spectromètres dispersifs et les spec-



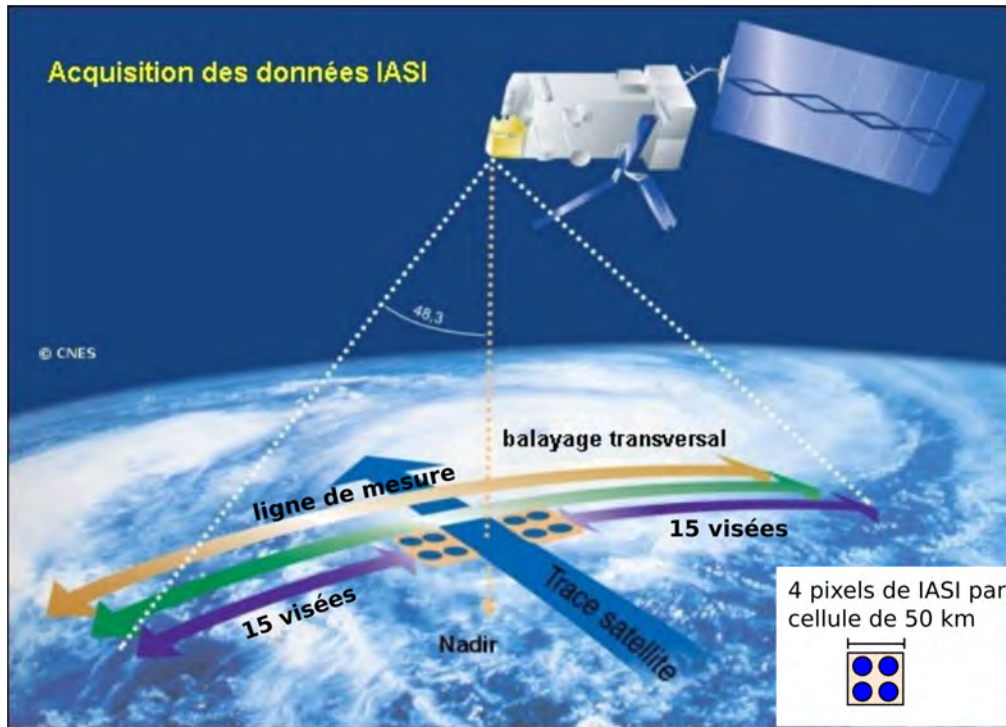


Figure 3.11: Schéma représentatif du balayage de IASI

tromètres à transformée de Fourier. L'instrument IASI est un spectromètre à transformée de Fourier. Il donne donc accès à la distribution spectrale du rayonnement. Le spectromètre à transformée de Fourier est basé sur le principe de l'interféromètre de Michelson.

Les données IASI sont réceptionnées par les stations au sol du système EPS pour les envoyer au système de traitement de niveau 1 transformant les données brutes de IASI en données de niveau 1a, 1b et 1c (Annexe B).

### 5. Niveaux de données IASI

Les données satellitaires sont classées par niveaux de catégories selon les traitements qui ont été effectués. Ces niveaux vont du niveau 0 à 2 (Annexe B avec IASI comme exemple). Les données IASI utilisées pour générer les analyses dans la thèse proviennent du niveau 2. Ce niveau fournit, en particulier, les paramètres géophysiques à partir des radiances mesurées. Pour cette étude, les niveaux 2 de IASI utilisés ont été développés au Laboratoire d'Aérodynamique avec le logiciel SOFRID, présenté dans la section suivante. Pour ce logiciel, seuls les profils au-dessus des nuages sont restitués.

### 3.3 Les méthodes d'inversion

#### 3.3.1 Le problème inverse

En réalité, la question qui se pose est :

*Comment extraire l'information atmosphérique (telle que la température) à partir des radiances du satellite ?*

Pour reformuler différemment,

*Comment résoudre le problème inverse ?*

Il existe donc des outils pour réaliser des inversions de radiances en profils de température et d'humidité, basés sur l'équation du transfert radiatif (section 3.1.2).

La mesure par télédétection contient une information limitée concernant la distribution du gaz observé, due au bruit et à la technique de mesure utilisée par le sondeur. De plus, comme les fonctions poids sont larges sur la verticale, et que le nombre de canaux est limité, un nombre infini de différents profils de température pourrait donner les mêmes radiances mesurées. Il est donc impossible d'inverser directement les radiances en profils atmosphériques. Seul un nombre limité d'informations indépendantes peut être obtenu. Le problème de l'inversion est alors dit "mal-posé".

Pour converger vers une solution, les algorithmes d'inversion doivent prendre en compte des informations supplémentaires permettant de résoudre le problème inverse.

#### 3.3.2 Le profil a-priori

Une des informations complémentaires que les algorithmes d'inversion utilisent est une climatologie du profil recherché comme a-priori tel que le profil de concentration de l'ozone troposphérique. Les profils obtenus par inversion sont la meilleure estimation possible de l'état atmosphérique déterminé, connaissant la mesure et l'état a-priori de l'atmosphère. Cette information a-priori peut être particulièrement importante là où la mesure contient peu ou pas d'information sur le profil vertical, comme par exemple sous des nuages. Les profils a-priori sont par le biais de l'opérateur d'observation transformés en radiance dans les modèles d'inversion.

#### 3.3.3 L'estimation optimale

Les méthodes d'inversion utilisent couramment "la méthode d'estimation optimale" ou *Optimal Estimation* en anglais, basée sur le théorème de Bayes. Cette méthode est, depuis les années 1970, utilisée pour l'inversion du profil de température et des concentrations atmosphériques à partir des mesures de télédétection atmosphérique [Rodgers, 1976, Rodgers, 1990, Rodgers, 2000]. Cette méthode permet d'avoir les informations détaillées du profil inversé. Les premières étapes de l'estimation optimale de Rodgers sont résumées ci-après.

Soit le vecteur d'état atmosphérique  $\mathbf{x}$  comprenant les concentrations d'ozone à différents niveaux d'altitude que l'on cherche à déterminer par la méthode d'inversion.

Les radiances mesurées sont représentées par le vecteur  $\mathbf{y}$ . La relation exacte entre  $\mathbf{x}$  et  $\mathbf{y}$  n'est pas connue mais elle est estimée grâce à un modèle de transfert radiatif noté  $F(\mathbf{x})$  qui utilise des paramètres mal connus par l'utilisateur, noté  $b$ , influençant la mesure (paramètres de calibration de l'instrument, absorption, ...).

$$\mathbf{y} = F(\mathbf{x}, b) + \epsilon \quad (3.4)$$

$\epsilon$  correspond à l'erreur de mesure associée au bruit de l'instrument. La méthode d'estimation optimale tente d'estimer la variable  $\mathbf{x}$  en trouvant une solution optimale (ou la restitution) notée  $\hat{\mathbf{x}}$ . Pour cela la méthode part du profil a-priori  $\mathbf{x}_a$ . Étant donné que le problème inverse de l'ozone est fortement linéaire, il est possible d'utiliser une approximation linéaire pour caractériser les restitutions [Rodgers, 2000, Barret et al., 2005] La méthode d'inversion linéarise le modèle  $F(\mathbf{x}, b)$  autour d'un état de référence  $\mathbf{x}_a$  et  $b_a$  :

$$\mathbf{y} - F(\mathbf{x}_a, b_a) = \frac{\partial F}{\partial \mathbf{x}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \frac{\partial F}{\partial b}(b - b_a) + \epsilon = \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{K}_b(b - b_a) + \epsilon \quad (3.5)$$

avec  $\mathbf{K}_x$  la sensibilité de la mesure à l'état atmosphérique réel et  $\mathbf{K}_b$  la sensibilité de la mesure aux paramètres du modèle.  $\mathbf{K}_x$  et  $\mathbf{K}_b$  sont les matrices de fonctions de poids ou également nommées "Jacobien de la fonction  $F$  du modèle de transfert radiatif" calculées par RTTOV dans notre cas.

Le modèle d'inversion  $I$  décrit comment le profil inversé  $\hat{\mathbf{x}}$  est obtenu à partir de la mesure  $\mathbf{y}$  et il utilise la meilleure estimation possible des paramètres d'erreur  $\hat{b}$  :

$$\hat{\mathbf{x}} = I(\mathbf{y}, \hat{b}) \quad (3.6)$$

En linéarisant ce modèle  $I$  autour de l'état  $\mathbf{y}_0$  et  $\hat{b}_a$ , il devient :

$$\hat{\mathbf{x}} - I(\mathbf{y}_0, \hat{b}_a) = \frac{\partial I}{\partial \mathbf{y}}(\mathbf{y} - \mathbf{y}_0) + \frac{\partial I}{\partial b}(b - \hat{b}_a) = \mathbf{G}_y(\mathbf{y} - \mathbf{y}_0) + \mathbf{G}_b(b - \hat{b}_a) \quad (3.7)$$

Les matrices  $\mathbf{G}$  sont les matrices de gain et expriment la sensibilité du profil inversé aux mesures et aux paramètres  $b$ .  $\mathbf{G}_y$  est la sensibilité de l'inversion à la mesure de radiance et  $\mathbf{G}_b$  est la sensibilité de l'inversion aux paramètres du modèle  $I$ .

Le profil inversé peut s'exprimer en fonction du modèle de transfert radiatif  $F$  (équation 3.4) et du modèle d'inversion  $I$  (équation 3.6), comme une fonction de l'état réel de l'atmosphère, appelée la fonction de transfert  $T$ , par :

$$\hat{\mathbf{x}} = I(F(\mathbf{x}, b), \hat{b}) = T(\mathbf{x}, b) \quad (3.8)$$

En linéarisant cette équation autour de l'état  $\mathbf{x}_a$  et  $b_a$  et en utilisant la définition de dérivée d'une fonction composée  $[f[u(x)]]' = f[u(x)].u'(x)$ , avec ici  $f = I$  et  $u(x) = F(\mathbf{x}, b)$  alors elle devient :

$$\hat{\mathbf{x}} - T(\mathbf{x}_a, b_a) = \frac{\partial T}{\partial \mathbf{x}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \frac{\partial T}{\partial b}(b - b_a) \quad (3.9)$$

$$= \frac{\partial I}{\partial \mathbf{y}} \frac{\partial F}{\partial \mathbf{x}}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \frac{\partial I}{\partial \mathbf{y}} \frac{\partial F}{\partial b}(b - b_a) \quad (3.10)$$

$$= \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \mathbf{K}_b(b - b_a) \quad (3.11)$$

Cependant, en pratique la succession d'inversion requiert une caractérisation adéquate de l'erreur et la considération de l'information a-priori en  $\mathbf{x}$ . Le profil a-priori n'est pas exacte ( $\mathbf{x}_a = \mathbf{x} + \epsilon_a$ ) et le problème inverse doit alors impliquer les erreurs dans le problème de l'estimation optimale en se demandant "Quel est la meilleure estimation de  $\mathbf{x}$  sachant  $\mathbf{y}$  ?". Ceci est effectué avec le théorème de Bayes qui ne sera pas développé ici.

### 3.3.4 Les fonctions de lissage ou Averaging Kernels

La fonction de lissage ou la matrice *Averaging Kernel* (en anglais),  $\mathbf{A}$ , est une des plus importantes caractérisations de l'estimation car elle caractérise la sensibilité des restitutions au profil recherché.

En partant de l'équation 3.11 :

$$\hat{\mathbf{x}} - T(\mathbf{x}_a, b_a) = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \mathbf{K}_b(b - b_a) = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \epsilon_y \quad (3.12)$$

Le terme  $\mathbf{K}_b(b - b_a)$  correspond à l'erreur totale de la mesure relative au modèle de transfert radiatif  $F(\mathbf{x})$  qui peut être noté  $\epsilon_y$ .

Si la méthode d'inversion est fiable alors la fonction de transfert  $T(\mathbf{x}_a, b_a) = \mathbf{x}_a$  et l'équation 3.12 devient alors :

$$\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \mathbf{G}_y \epsilon_y \quad (3.13)$$

Soit la matrice  $\mathbf{A}$  définie par [Rodgers, 2000] :

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}_y \mathbf{K}_x = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{y}} \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \mathbf{x}} = \frac{\partial T}{\partial \mathbf{x}} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{x}} \quad (3.14)$$

L'équation 3.13 s'écrit alors :

$$\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a = \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) + \epsilon \quad (3.15)$$

Cette équation estime la qualité de l'inversion [Rodgers, 2000].

Sans tenir compte des erreurs associées aux modèle de transfert radiatif,  $\epsilon$  tend vers 0 et l'équation 3.15 peut se simplifier par :

$$\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a = \mathbf{A}(\mathbf{x} - \mathbf{x}_a) \quad (3.16)$$



Cette équation décrit la relation existante entre le profil réel ( $\mathbf{x}$ ), le profil a-priori ( $\mathbf{x}_a$ ) et le profil inversé ( $\hat{\mathbf{x}}$ ). Chaque ligne de la matrice  $\mathbf{A}$  montre, à une altitude donnée, comment le système lisse ou amplifie les différences entre l'état réel de l'atmosphère et le profil a-priori. Chaque colonne de la matrice  $\mathbf{A}$  correspond à la réponse du système suite à une perturbation sur l'état réel atmosphérique. Si le système d'observation était idéal, la matrice  $\mathbf{A}$  serait la matrice identité. Il deviendrait alors  $\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}$  et toute l'information de l'inversion proviendrait alors de la mesure. La résolution du problème inverse revient d'après [Rodgers, 2000] à minimiser :

- i) l'écart entre les radiances mesurées  $\mathbf{y}$  et les radiances calculées par le transfert radiatif et
- ii) l'écart entre le vecteur d'état atmosphérique  $\mathbf{x}$  avec l'a-priori  $\mathbf{x}_a$  sans négliger les matrices de covariances d'erreurs associées à l'a-priori et aux mesures.

### 3.3.5 Les degrés de liberté

Le nombre de degrés de liberté (DFS pour *Degrees of Freedom for Signal* en anglais) se calcule pour déterminer plus précisément le nombre d'éléments indépendants présents dans la mesure [Rodgers, 2000].

Le nombre de degrés de liberté du signal décrit le nombre de quantités indépendantes utiles qu'il y a dans une restitution et peut se calculer par la trace de l'Averaging Kernel :  $DFS = tr(\mathbf{A})$ .

### 3.3.6 Le logiciel d'inversion SOFRID

Dans le but de restituer les profils verticaux d'ozone à partir des radiances IASI, le logiciel *Software for a Fast Retrieval of IASI Data*, SOFRID, a été développé dans le cadre de *EUMETSAT Satellite Application Facility for Numerical Weather Prediction* (NWP SAF) au sein du *Laboratoire d'Aérodynamique* (LA) à Toulouse. SOFRID est basé sur un algorithme 1D-Var du centre Met-Office couplé avec le code RTTOV.

L'algorithme 1D-Var (méthode variationnelle 1D) utilisé dans SOFRID, est un code de restitution pour les sondeurs passifs à visée nadir, développé dans le cadre de EUMETSAT NWP SAF [Pavelin et al., 2008]. Cet algorithme est basé sur les mêmes principes que l'Estimation Optimale de [Rodgers, 2000], détaillé précédemment. Il faut fournir au 1D-Var : les mesures, le tangent linéaire et l'adjoint de l'opérateur d'observation (cas où  $H$  est non-linéaire) correspondant au Jacobien du transfert radiatif, une information a-priori et des erreurs associées. Les modèles de tangent linéaire, adjoint et jacobien sont fournis par le modèle de transfert radiatif RTTOV (version v11.1) utilisé dans SOFRID.

Pour cette thèse, la version v3.0 de SOFRID (figure 3.12) a été utilisée. Les paramètres d'entrée pour SOFRID sont les spectres IASI (données L1c) fournis par EUMETSAT, le profil a-priori et les paramètres atmosphériques. Les profils de température et d'humidité nécessaires pour les calculs du transfert radiatif proviennent des produits opérationnels EUMETSAT de niveau 2 (voir la section 3.2.2) de IASI. Ces profils restent constants durant la restitution. Les autres paramètres

atmosphériques nécessaires dans SOFRID telle que la température de surface sont fournis par les analyses ECMWF.

Un pré-traitement est effectué selon que l'utilisateur choisit la période d'étude, la région géographique et l'espèce chimique. Durant ce pré-traitement, un premier filtrage est appliqué sur les nuages selon [Clerbaux et al., 2009] et basé sur la couverture nuageuse fractionnelle issue de l'imageur AVHRR (voir la section 3.2.2) provenant des produits L2 EUMETSAT. Tous les pixels correspondant à une couverture fractionnelle nuageuse entre 0 et 20 % sont traités comme pixels sans nuage. Au-delà, les pixels ne sont pas traités. Pour les pixels dont la fraction nuageuse est indisponible, un autre filtre est utilisé selon la méthode [Eremenko et al., 2008] basée sur la différence des températures de surfaces restituées à partir des radiances IASI à 11 et 12 microns et provenant des analyses ECMWF. Si les températures de surface restituées à 11 et 12 microns diffèrent de plus de 10 K, les pixels affectés sont considérés comme possédant de fins nuages et sont alors retirés [Barret et al., 2011].

L'émissivité de surface est calculée par le module d'émissivité de surface terrestre RTTOV UW-IRremis [Borbas and Ruston, 2010]. Un paramètre, calculé pour chaque pixel à partir des températures de brillance, permet d'éliminer les données au dessus des pixels affectés par la signature spectrale du sable.

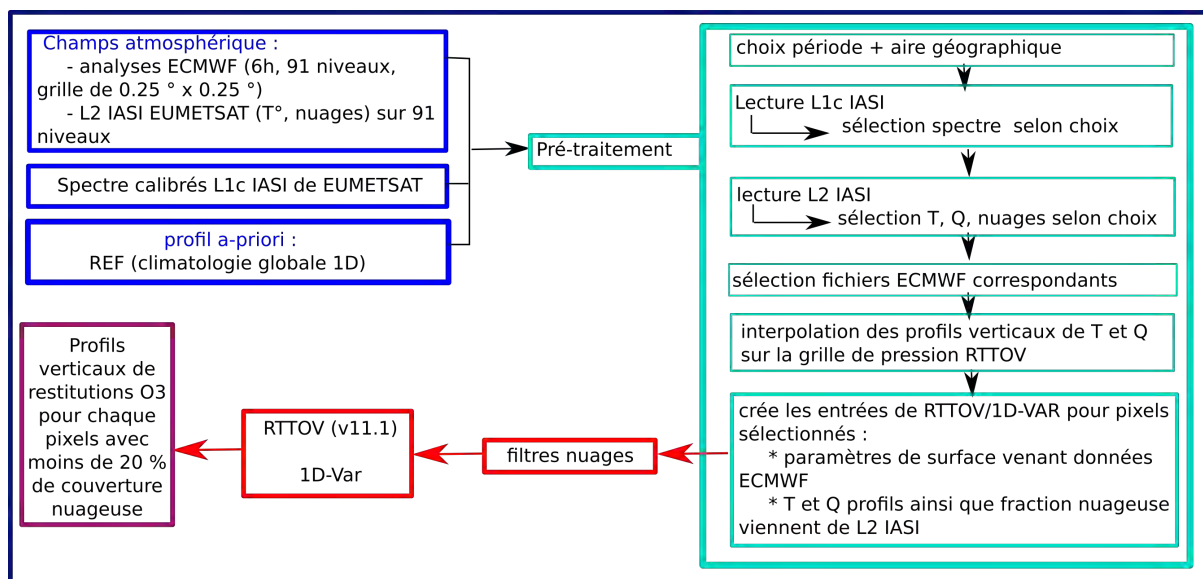


Figure 3.12: Schéma expliquant le fonctionnement de SOFRID, basé sur le poster d'Éric Le Flochmoën, lors de la conférence IASI 2010 à Sévrier, France.

Un exemple de fonction de lissage d'ozone pour IASI-SOFRID est représenté dans la figure 3.13, d'après l'article de [Barret et al., 2011]. Le DFS est égale à 1.7 [Barret et al., 2011], et environ 2 pour les tropiques, signifiant qu'il y a bien deux couches indépendantes d'information dans la bande tropicale pour les données IASI. Les DFS peuvent avoir des valeurs différentes suivant le choix de la hauteur de tropopause et de la technique de restitution. Les DFS sont moins élevés pour les hautes latitudes puisque la sensibilité verticale de IASI est meilleur sur terre

qu'au dessus des mers ou des glaces [Clerbaux et al., 2009, Pommier et al., 2012]. La figure 3.13 montre que les restitutions de IASI sont sensibles seulement à certaines altitudes. Un pic sur la vertical indique l'altitude d'une sensibilité maximale de restitution. Ainsi, la sensibilité de IASI est très faible dans la couche limite (entre 1013 hPa et 700 hPa). Pour ce niveau, l'information dans les restitutions provient alors du profil a-priori. Deux pics séparés apparaissent, à 150 hPa et à 500 hPa, révélant une sensibilité maximale des mesures de IASI au niveau de la tropopause et de la troposphère libre.

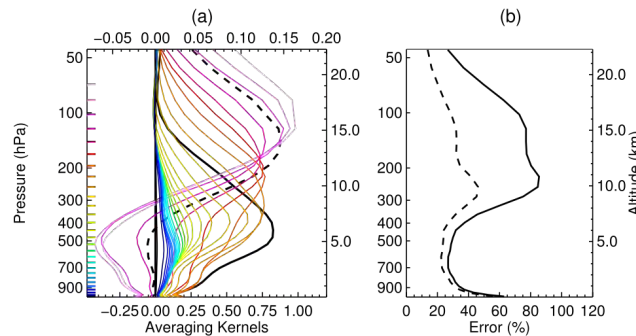


Figure 3.13: Exemple d'Averaging Kernels (a) et de profils a-priori (b) pour les restitutions d'O<sub>3</sub> de IASI (300 pixels) dans la région de la mer d'Arabie le 17/11/2008. **(a)** Chaque ligne de couleur associée à l'axe des abscisses caractérise un averaging kernels pour chaque couche d'altitude (tirés colorés sur l'axe-y) de restitutions sous 70 hPa. La ligne solide noir correspond à l'averaging kernels de la colonne partiel d'ozone (1013-225 hPa) et la ligne en pointillé noir à l'UTLS (225-70 hPa). **(b)** Incertitude du profil a-priori d'ozone (ligne noire solide) et erreur de restitution d'ozone IASI (en pointillé). [Barret et al., 2011]

À partir des fonctions de lissage et des DFS, [Barret et al., 2011] estiment que les profils troposphériques obtenus par IASI-SOFRID contiennent deux informations indépendantes situées vers 150 hPa et 500 hPa (figure 3.13). Ces informations sont contenues dans la colonne d'ozone troposphérique comprise entre 1013 hPa et 225 hPa, et la haute-troposphère/basse-troposphère (upper tropospheric-lower stratospheric, UTLS) située entre 225 hPa et 70 hPa. Les erreurs de restitution associées sont inférieures à 20 %. Les profils d'ozone obtenus à partir de SOFRID sont décrits en détail dans [Barret et al., 2011], et une validation de ces produits contre les ozonesondes est disponible dans [Dufour et al., 2012].

Le profil a-priori utilisé dans SOFRID, comme paramètre d'entrée, est calculé en faisant une moyenne globale des profils d'ozone in-situ mesurés en 2008 par radiosondage. Il y a environ 800 profils radiosondés utilisés, provenant de la base de données WOUDC et des données SHADOZ (Southern Hemisphere Additional OZonesondes, [Thompson et al., 2003]). Les données du programme MOZAIC [Thouret et al., 1998] mesurées lors de décollage et d'atterrissage d'avions de ligne, ont également été utilisées, procurant ainsi environ 1600 profils d'ozone supplémentaires. Les profils a-priori (figure 3.14a) sont complétés par des profils d'ozone d'analyses MLS/Aura pour les niveaux supérieurs à 220 hPa. Tout au long de cette étude, ce

profil a-priori sera nommé "a-priori référence" et noté "a-priori REF". De même les erreurs associées au profil a-priori REF sont exprimées par la matrice de covariance (figure 3.14c). Les éléments  $i$  et  $j$  de cette matrice 43 par 43 sont obtenus à partir des covariances entre les profils mesurés (à partir des sondes d'ozone, des données WUDC et des profils MLS) sur l'année 2008 [Barret et al., 2011]. Elle sera nommée dans la suite par "matrice de covariance référence :  $Cov_{REF}$ ".

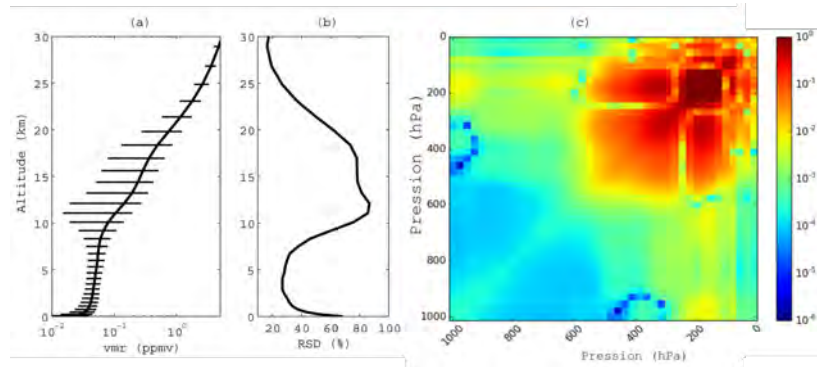


Figure 3.14: (a) profil moyen global de l'a-priori REF (ligne solide) et sa variabilité associée (les tirets représentent la racine carré des éléments diagonaux de la matrice de covariance  $Cov_{REF}$ ). (b) Écart-type relatif à l'a-priori REF. Ces deux figures sont tirées de l'article [Barret et al., 2011]. (c) Matrice de covariance ( $Cov_{REF}$ ) globale associée au profil a-priori REF.

Les restitutions IASI obtenues par SOFRID sont des profils verticaux d'ozone établis sur 43 niveaux, allant de 1013 hPa à 0.1 hPa. Elles sont fournies sur une grille de  $2^\circ \times 2^\circ$  en global pour cette étude.

Le code de SOFRID a été mis en œuvre au CERFACS dans le cadre de cette thèse, afin de pouvoir tester et mettre en place une nouvelle forme de profil a-priori, qui ne sera plus unique et fixé pour tout le globe mais variable dans le temps et l'espace. Les résultats obtenus par cet a-priori, dit "dynamique", sont présentés dans le chapitre 7.



# Chapitre 4

## L'assimilation de données

L'assimilation de données est utilisée depuis plusieurs dizaines d'années afin d'améliorer les prévisions du temps et de construire des réanalyses. Dans le domaine de la chimie atmosphérique, l'utilisation de l'assimilation de données est relativement récente [Austin, 1992, Riishøjgaard, 1996]. Dans un article pionnier, [Fisher and Lary, 1995] ont démontré les avantages de l'approche d'assimilation 4D-Var pour analyser les mesures de plusieurs espèces chimiques dans la stratosphère avec un modèle de chimie complète. Les mesures de natures diverses (mesures *in-situ*, mesures aéroportées et mesures satellitaires) ont alors été assimilées dans des modèles de chimie-transport à l'échelle globale [Levelt et al., 1998, Baier et al., 2005] ou régionale [Elbern et al., 1997, Elbern and Schmid, 1999, Elbern et al., 2000]. Plusieurs études 4D-Var avec des modèles de chimie ont été publiées depuis [Khattatov et al., 1999, Elbern and Schmidt, 2001, Errera and Fonteyn, 2001].

Grâce à la disponibilité de plusieurs jeux de données satellitaires sur l'ozone, une majorité d'études d'assimilation se sont focalisées jusqu'à présent sur ce composant atmosphérique. L'une des premières études, à ce sujet, est décrite par [Levelt et al., 1996] où les données d'ozone du sondeur TOVS ont été assimilées avec un modèle global 2D. Ce travail a été étendu par [Levelt et al., 1998] qui traitent de l'assimilation des données d'ozone UARS (Upper Atmosphere Research Satellite) MLS avec le modèle 3D de chimie-transport ROSE (Research for Ozone in the Stratosphere and its Evolution, [Rose and Brasseur, 1989]). De même, [Es-kes et al., 1999] discutent de la mise en œuvre du 4D-Var et ont utilisé cette approche pour assimiler les colonnes d'ozone des données du satellite GOME (Global Ozone Monitoring Experiment). Les premières expériences d'assimilation d'ozone stratosphérique du sondeur TOMS avec le système d'assimilation 4D-Var dans le modèle de l'ECMWF sont discutées dans l'article de [Holm et al., 1999]. À partir des années 2000, le bureau d'assimilation de données de la NASA (*National Aeronautics and Space Administration*) a développé le modèle GEOS-DAS (Goddard Earth Observing System Data Assimilation System) pour l'analyse opérationnelle des données TOMS et SBUV/2, comme décrit dans [Riishøjgaard et al., 2000] et [Stajner et al., 2001]. En Europe, les données stratosphériques d'ozone de UARS MLS et de GOME ont été assimilées avec le Unified Model (UM) de l'UK Met Office [Struthers et al., 2002]. Rapidement après la mise en service de la version à 60 niveaux verticaux (stratosphère-troposphère) du modèle IFS de l'ECMWF en octobre 1999, le

KNMI (*Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut*, the Royal Netherlands Meteorological Institute) l'utilisa pour produire des analyses et des prévisions d'ozone basées sur les mesures GOME en temps quasi-réel. Le projet européen ASSET (Assimilation of Envisat data) exploite et développe l'observation de la Terre en utilisant l'assimilation de données sur la période janvier 2003 - juin 2006. Une part du projet ASSET est d'étudier la distribution spatiale et temporelle des polluants troposphériques [Lahoz et al., 2007b] afin de suivre et de prédire la qualité de l'air dans le cadre de Copernicus (précédemment nommé GMES). Il s'en est suivi le service pré-opérationnel pour l'atmosphère MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate) qui a été poursuivi par le projet MACC-II. Le service CAMS a été développé pour rendre disponible les réanalyses du projet MACC représentant un jeu de données de réanalyses globales sur la composition atmosphérique. À partir de l'année 2003 et dans le cadre du projet européen ASSET, le CERFACS s'associe avec le CNRM de Météo-France pour développer le système d'assimilation appliqué à la chimie atmosphérique : MOCAGE-Palm [Massart et al., 2005, Geer et al., 2006, Lahoz et al., 2007b, Massart et al., 2009], actuellement nommé MOCAGE-Valentina.

L'assimilation des profils ou des colonnes totales d'ozone, en utilisant des CTMs, est maintenant opérationnelle dans de nombreux instituts, ailleurs qu'en France, tels que :

- l'ECMWF (<https://www.ecmwf.int/en/research/data-assimilation>),
- le KNMI avec le centre *Tropospheric Emission Monitoring Internet Service* (TEMIS, <http://www.temis.nl/>),
- le *Belgian Institute for Space Aeronomy -Institut royal d'Aéronomie Spatiale de Belgique* (BIRA-IASB, <http://www.bascoe.oma.be/>),
- le centre aérospatial allemand *Deutschen Zentrums für Luft- und Raumfahrt* (DLR) - *Deutsche Fernerkundungsdatenzentrum* (DFD) ou en anglais le *German Remote Sensing Data Center* un institut de la *German Aerospace Center* (DLR-DFD, <http://taurus.caf.dlr.de>),
- et enfin la NASA (<http://gmao.gsfc.nasa.gov/operations/>).

Le modèle MOCAGE du CNRM/Météo France et le système d'assimilation de données VALENTINA du CERFACS sont utilisés pour cette thèse.

En combinant les champs physiques estimés par un CTM avec les observations, l'assimilation de données permet d'obtenir une image plus réaliste de l'évolution de la composition de l'atmosphère [Lahoz et al., 2007a].

Il existe deux familles de méthodes d'assimilation de données :

- les méthodes statistiques (séquentielle) où l'on calcule le BLUE directement par des calculs algébriques. Cette méthode suppose que toutes les observations proviennent du passé relativement à l'analyse faite au présent. L'approche séquentielle permet d'effectuer une analyse à chaque temps où une observation est disponible. Cette approche est effectuée afin d'estimer l'état vrai du système à cet instant donné ;

- les méthodes rétrospectives (variationnelles) où l'on minimise une fonction coût  $J$  qui mesure l'écart aux observations. L'approche variationnelle suppose que des observations provenant du futur par rapport à l'analyse sont aussi utilisables.

Ce sont les méthodes variationnelles qui ont été utilisées dans ce travail de thèse, et en particulier celle dite "4D-Var".

Ce chapitre du manuscrit décrit le système d'assimilation nécessaire aux analyses effectuées durant ce travail de thèse. Il s'agit de concepts et de formalismes théoriques portant sur les méthodes d'assimilation de données. Pour une compréhension plus poussée, il sera nécessaire de se reporter à la littérature déjà existante et précédemment référencée.



## 4.1 Concepts et formalisme

Des notations sont adoptées pour les sections suivantes.<sup>1</sup>

### “Qu’est-ce que l’assimilation de données ?”

La première démarche scientifique est d’essayer de comprendre comment le système physique atmosphérique fonctionne. Les modèles numériques résolvent après discrétisation les équations qui régissent l’évolution des variables tels que les vents et la température pour les modèles météorologiques, ou la concentration des espèces pour les modèles de chimie-transports. Ces modèles perfectionnés nécessitent la constitution des états initiaux pour prévoir les états futurs. Dans le cadre de l’assimilation de données, les sorties de ces modèles issues de leur intégration temporelle, sont comparées à des mesures expérimentales pour améliorer les états de départ des modèles. Il s’agit d’un problème inverse. C’est l’assimilation de données qui intervient dans ce cas sous un angle probabiliste. De ce fait, les erreurs (c’est-à-dire les incertitudes) sur les sorties du modèle, sur les mesures expérimentales et sur le modèle lui-même doivent être estimées.

En effet, comme déjà mentionné, les mesures expérimentales possèdent des erreurs de mesures. De plus, il apparaît des erreurs de représentativité provenant d’une part du caractère discontinu des observations, et d’autre part de la transformation effectuée sur les sorties du modèle pour obtenir des grandeurs comparables aux mesures expérimentales (les interpolations) mais également à des défauts de modélisation (au niveau du transfert radiatif par exemple). L’assimilation de données est donc définie comme l’ensemble des techniques statistiques permettant d’améliorer la connaissance de l’état d’un système à partir des propriétés d’évolution du système considéré et des observations expérimentales. La théorie d’assimilation de données est donc d’utiliser au mieux les données observées en fonction des propriétés de propagation de l’information dans le système physique modélisé.

### L’analyse

On parle d’analyse pour décrire une représentation fiable de l’état “vrai” du système à un instant donné. Elle peut servir comme état initial pour une prévision ou servir de référence afin de vérifier la qualité des observations. Le résultat du processus d’assimilation de données (analyse), qui a la meilleure représentation possible de la réalité, est obtenue par comparaison entre le modèle lui-même avec les observations. Il est important d’avoir une prévision précédente (appelée ébauche) pour bien poser le problème. Cette ébauche est une estimation *a-priori* de l’état du modèle. L’assimilation de données vise à estimer les conditions initiales du modèle et divers paramètres en tenant compte de profils *a priori* et des observations. Cette ébauche peut être une climatologie, un état quelconque ou un état obtenu à partir de prévisions issues de précédentes analyses.

---

<sup>1</sup>**Les matrices** : sont écrites en majuscule et en gras,  
**Les vecteurs** : sont écrits en minuscule et en gras,  
**Les scalaires** : sont écrits en italiques.

### Vecteur d'état

L'état du modèle est défini par une matrice colonne appelée “vecteur d'état” qui désigne la représentation numérique de l'atmosphère. Ce vecteur d'état est noté  $\mathbf{x}$ . Il existe plusieurs vecteurs d'état, tels que l'état vrai noté  $\mathbf{x}^t$ . La première estimation de l'état analysé est l'ébauche  $\mathbf{x}^b$  et l'état analysé est noté  $\mathbf{x}^a$ . L'état vrai  $\mathbf{x}^t$  reste toujours inconnu en assimilation de données. L'assimilation de données a pour but de donner l'état analysé  $\mathbf{x}^a$  qui est juste la meilleure estimation possible de  $\mathbf{x}^t$  en connaissant les observations  $\mathbf{y}$  et en minimisant les erreurs d'observation et d'ébauche.

### Vecteur de contrôle

Résoudre le problème d'analyse dans l'espace complet du vecteur d'état n'est pas forcément souhaité. De plus, les ressources informatiques disponibles obligent à réduire le domaine ou la résolution d'analyse. De manière générale, le vecteur de contrôle correspond aux variables que l'on souhaite identifier afin de faire coller la sortie du modèle avec les observations. L'objectif est alors de formuler le problème d'analyse comme la recherche d'une correction de l'ébauche telle que  $\mathbf{x}^a$  soit le plus proche possible de  $\mathbf{x}^t$  :

$$\mathbf{x}^a = \mathbf{x}^b + \delta\mathbf{x} \quad (4.1)$$

. Cette correction (ou incrément)  $\delta\mathbf{x}$  appartient à un sous-espace appelé espace de contrôle.

### Observations

Chaque analyse utilise un ensemble de valeurs observées rangé dans un vecteur d'observations noté  $\mathbf{y}^o$ . Dans l'idéal, il faudrait minimiser la distance entre  $\mathbf{x}^a$  et  $\mathbf{y}$ . Les observations sont très dispersées dans l'espace et ne sont pas disposées sur la même grille que le modèle. Une fonction permettant de passer de l'espace du modèle à celui des observations a donc été définie. Cette fonction est nommée *opérateur d'observation*  $\mathbf{H}$ , déjà mentionné pour les méthodes d'inversion dans SOFRID (section 3.1.2).

### Innovations

Le point essentiel de l'assimilation de données est la comparaison entre les observations et le vecteur d'état. Aux points d'observations, il est défini un vecteur  $\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}$  qui est appelé “vecteur d'innovations” quand le vecteur d'état est l'ébauche et appelé “vecteur des résidus d'analyse” quand le vecteur d'état est l'analyse. L'étude de ces différents vecteurs permet de déterminer la qualité de la méthode d'analyse.

### Représentation des incertitudes

Les incertitudes liées à la présence d'erreurs inconnues dans l'ébauche et les observations ainsi que les erreurs d'estimation de l'analyse doivent être prises en compte.

Pour l'ébauche, les observations et l'analyse, leurs erreurs sont définies par les équations suivantes :

- erreur d'ébauche :  $\mathbf{e}^b = \mathbf{x}^b - \mathbf{x}^t$ . Cette erreur ne prend pas en compte l'erreur de discrétisation donc des troncatures dans les échelles de temps et d'espace. Si cette erreur est nulle, alors l'ébauche est conservée sans tenir compte des observations dans l'analyse.
- erreur d'observation :  $\mathbf{e}^o = \mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}^t$ . Cette erreur contient l'erreur de mesure due aux imprécisions de l'appareil de mesure, ainsi que l'erreur due à l'opérateur d'observation  $\mathbf{H}$  et l'erreur de représentativité. Les erreurs de représentativité sont associées à la conversion du vecteur d'état en vecteur d'observation via l'opérateur  $\mathbf{H}$ . Elles peuvent alors être associées à des problèmes d'interpolation (autrement dit les erreurs de discrétisation qui empêchent  $\mathbf{x}^t$  d'être une représentation parfaite de la réalité) mais aussi à des défauts de modélisation (lors du transfert radiatif, par exemple). Si cette erreur est nulle, alors les observations sont un reflet exact de la réalité.
- erreur d'analyse :  $\mathbf{e}^a = \mathbf{x}^a - \mathbf{x}^t$ . La trace de cette matrice d'erreur définit une estimation de l'erreur de l'état analysé. L'assimilation de données tend à la minimiser de façon à être plus petite que l'erreur sur l'ébauche.

### Covariances d'erreur

Dans un système multidimensionnel, les covariances sont décrites par une matrice carrée symétrique. La diagonale de la matrice est constituée de la variance d'un paramètre en un point de grille correspondant à la dispersion statistique de l'erreur et les termes non-diagonaux sont les covariances entre deux des variables du vecteur d'état du modèle. Exemple pour le cas de la matrice de covariance d'erreur d'ébauche  $\mathbf{B}$  :

Si le vecteur d'état du modèle est de dimension  $n$  alors la matrice de covariance d'erreur d'ébauche est de dimension  $n \times n$ .

Soit trois variables ou erreurs d'ébauche  $i, j, k$  et trois axes  $(\epsilon_i, \epsilon_j, \epsilon_k)$  alors  $\mathbf{B}$  s'écrit :

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} \ddots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & var(\epsilon_i) & cov(\epsilon_i, \epsilon_j) & cov(\epsilon_i, \epsilon_k) & \dots \\ \dots & cov(\epsilon_i, \epsilon_j) & var(\epsilon_j) & cov(\epsilon_j, \epsilon_k) & \dots \\ \dots & cov(\epsilon_i, \epsilon_k) & cov(\epsilon_j, \epsilon_k) & var(\epsilon_k) & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \ddots \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

Les variances sont non-nulles puisque l'ébauche ne représente pas la réalité de manière parfaite. La matrice est alors définie positive et les termes non-diagonaux sont liés aux corrélations d'erreur à travers :

$$\rho(\epsilon_i, \epsilon_j) = \frac{cov(\epsilon_i, \epsilon_j)}{\sqrt{var(\epsilon_i)var(\epsilon_j)}} \quad (4.3)$$

## 4.2 Les méthodes variationnelles

Cette approche de l'assimilation de données est basée sur la théorie de l'optimisation (cf chapitre 3.3.3). Contrairement aux méthodes séquentielles, la méthode variationnelle traite le problème en minimisant une fonction coût qui représente une moyenne des différentes erreurs présentées précédemment. Plusieurs méthodes variationnelles existent en assimilation de données mais seules celles utilisées durant la thèse sont présentées par la suite : les méthodes variationnelles 4D-Var et 1D-Var. Cette dernière est utilisée en parallèle dans SOFRID.

### Le 1D-Var

La technique du variationnelle 1D-Var est un cas particulier du 3D-Var (présenté ci-dessous) à une seule dimension. Un très bon exemple est la restitution des données satellitaires pour lequel l'algorithme 1D-Var réalise une analyse d'une colonne atmosphérique (l'état du modèle) à la position de chaque sondage par satellite telles qu'en utilisant les radiances TOVS ou les mesures micro-ondes.

### Le 3D-VAR

La méthode d'assimilation de données tri-dimensionnelles, notée 3D-VAR pour "3 Dimensional-VARiational assimilation", cherche l'état le plus vraisemblable en se basant sur les lois de probabilité des erreurs d'observation et d'ébauche [Lorenc, 1986].

Par abus de langage, le 3D-Var prend en compte également les problèmes bi-dimensionnelles. En général, le nouvel état analysé est utilisé comme point de départ pour la prévision suivante.

Il est possible de résoudre le problème en définissant une fonction coût  $J(\mathbf{x})$  :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \frac{1}{2}(\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}) \quad (4.4)$$

avec pour rappel :  $\mathbf{x}$  le vecteur de contrôle,  $\mathbf{x}^b$  l'ébauche,  $T$  la transposée de la matrice,  $\mathbf{B}$  la matrice de covariance d'erreur d'ébauche,  $\mathbf{y}^o$  le vecteur d'observations,  $\mathbf{H}$  l'opérateur d'observation, et  $\mathbf{R}$  la matrice de covariance d'erreur d'observation.

Elle peut s'écrire également  $J(\mathbf{x}) = J^b(\mathbf{x}) + J^o(\mathbf{x})$  avec  $J^o$  l'écart aux observations et  $J^b$  l'écart à l'ébauche.

Si l'opérateur d'observation est supposé linéaire alors la fonction coût est quadratique et donc convexe et elle possède un minimum unique estimé lorsque son gradient s'annule :

$$\nabla J(\mathbf{x}) = \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) - \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}) = 0 \quad (4.5)$$

Cependant, il s'agit pour ces travaux de conditions dynamiques atmosphériques non linéaires puisque l'étude porte sur l'ozone troposphérique. Il s'agit d'effets indirect puisqu'il y a non-linéarités entre les émissions des précurseurs d'ozone et des productions d'ozone. Les méthodes d'assimilation de données doivent prendre en

compte ces non-linéarités. Cependant, les fonctions coût à minimiser sont alors non quadratiques et la minimisation devient difficile à traiter. Les méthodes incrémentales permettent de résoudre ce problème en calculant une suite de minimum de fonctions coût quadratiques. L'intérêt de cette méthode est que pour chacune des fonctions coût il existe un unique point stationnaire représentant le minimum.

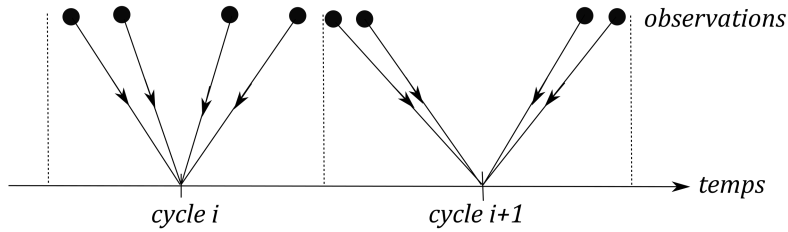


Figure 4.1: Répartition des observations dans un 3D-Var

Les observations étant diverses et réparties inégalement, une fenêtre temporelle de taille arbitraire est définie, sur laquelle l'analyse est effectuée. Pour le 3D-Var, les observations sont regroupées à l'instant où s'effectue l'assimilation (figure 4.1).

#### Le 4D-VAR

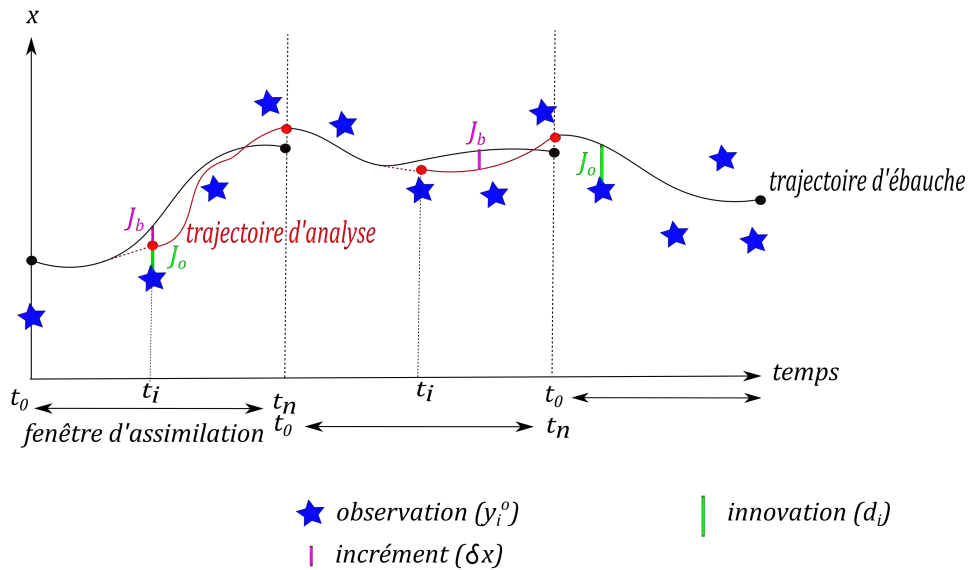


Figure 4.2: Cycle d'assimilation 4D-Var. Dans la fenêtre d'assimilation  $[t_o, t_n]$ , l'analyse est effectuée pour assimiler les observations en utilisant comme ébauche une prévision à courte échéance issue de l'analyse la plus récente. Une réactualisation de la trajectoire du modèle, initialisée par l'ébauche s'effectue. Figure inspirée d'illustrations provenant de cours du ECMWF ([www.ecmwf.com](http://www.ecmwf.com)).

Le 4D-Var ou *Méthode d'assimilation variationnelle quadri-dimensionnelle* ne vise pas à obtenir l'état optimal à un instant donné, mais à obtenir la trajectoire optimale sur une fenêtre de temps donnée.

Les observations sont donc prises en compte aussi bien dans leur distribution spatiale que temporelle, contrairement au 1D-Var et au 3D-Var. Le 4D-Var apporte un aspect temporel en plus puisqu'il propage l'information apportée par les observations à l'instant initial de la fenêtre d'assimilation. L'analyse obtenue permet, dans ce cas, que la trajectoire du modèle soit la plus proche possible de l'ensemble des observations utilisées (figure 4.2).

Pour chaque cycle d'assimilation (figure 4.2), entre  $t_o$  et  $t_n$ , le modèle évolue à partir de l'état initial d'ébauche (courbe noir) et les vecteurs d'innovation sont calculés pour chaque observation (ligne verte). L'analyse s'effectue à partir de l'instant  $t$ , compris entre  $t_o$  et  $t_n$ , et elle est obtenue par l'incrément rajouté sur l'ébauche. L'état analysé (courbe rouge) est propagé jusqu'à la fin de la fenêtre d'assimilation et il est utilisé comme état initial d'ébauche pour la fenêtre suivante. Par rapport au 3D-Var, cette amélioration ajoute en plus dans l'analyse, l'information sur la connaissance de l'évolution du système.

Soit  $M_0$  l'opérateur *a priori* non linéaire qui permet de propager l'état du système  $\mathbf{x}$  de  $t_0$  à  $t_i$ :

$$\mathbf{x}(t_i) = M_{0 \rightarrow i}(\mathbf{x}) \quad (4.6)$$

La fonction coût  $J(\mathbf{x})$  s'écrit alors :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \frac{1}{2} \sum_{i=0}^N (\mathbf{y}_i^o - \mathbf{H}_i \mathbf{x}(t_i))^T \mathbf{R}_i^{-1} (\mathbf{y}_i^o - \mathbf{H}_i \mathbf{x}(t_i)) \quad (4.7)$$

$$= \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \frac{1}{2} \sum_{i=0}^N (\mathbf{y}_i^o - \mathbf{H}_i M_{0 \rightarrow i}(\mathbf{x}))^T \mathbf{R}_i^{-1} (\mathbf{y}_i^o - \mathbf{H}_i M_{0 \rightarrow i}(\mathbf{x})) \quad (4.8)$$

$$= \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \frac{1}{2} \sum_{i=0}^N (\mathbf{y}_i^o - G_i \mathbf{x})^T \mathbf{R}_i^{-1} (\mathbf{y}_i^o - G_i \mathbf{x}) \quad (4.9)$$

$$(4.10)$$

où  $G_i \mathbf{x} = \mathbf{H}_i \mathbf{x}(t_i) = \mathbf{H}_i M_{0 \rightarrow i}(\mathbf{x})$  avec l'opérateur  $G_i$  correspondant à l'opérateur d'observation généralisé pour l'état  $\mathbf{x}$  propagé par le modèle de  $t_0$  à  $t_n$ .

Le gradient s'obtient alors :

$$\nabla J(\mathbf{x}) = \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) - \sum_{i=0}^N \mathbf{M}_{0 \rightarrow i}^T \mathbf{H}_i^T \mathbf{R}_i^{-1} (\mathbf{y}_i^o - G_i \mathbf{x}) = 0 \quad (4.11)$$

L'opérateur  $\mathbf{M}_{0 \rightarrow i}^T$  est l'adjoint du modèle linéaire-tangent de l'opérateur linéarisé  $\mathbf{M}_{0 \rightarrow i}$ . Cependant l'équation  $\nabla J = 0$  ne peut pas être résolue directement et le gradient de la fonction coût peut être estimé par la méthode des équations adjointes du modèle [Talagrand and Courtier, 1987]. À chaque itération de la minimisation de la fonction coût, l'utilisation de l'adjoint est coûteuse (l'intégration linéaire d'un terme quadratique demande le calcul de deux termes à la place d'un seul). De plus, il est nécessaire de stocker la trajectoire. C'est pourquoi en opérationnel, la méthode 4D-Var incrémentale a été proposée [Courtier et al., 1994, Rabier et al., 1999] et est utilisée. Le modèle linéaire-tangent est écrit avec une physique simplifiée rendant alors l'écriture de l'adjoint du modèle plus facile.

### 4.3 Caractéristiques de l'algorithme d'assimilation de MOCAGE

Comme mentionné dans l'introduction de ce chapitre, le système d'assimilation utilisé par le CERFACS, le CNRM et le Laboratoire d'Aérodynamique est le système MOCAGE-VALENTINA. Ce système utilise le coupleur PALM [Buis et al., 2006], développé au CERFACS, qui offre de nombreuses possibilités d'assimilation : la méthode variationnelle (3D-Var, 4D-Var) mais aussi plusieurs choix possibles sur le domaine d'étude (global ou régional), le type d'observations assimilées, ...

Dans le cadre de la thèse, l'algorithme d'assimilation utilisé dans MOCAGE-VALENTINA est le 4D-VAR qui permet d'avoir une fenêtre d'assimilation longue ainsi qu'une meilleure exploitation spatio-temporelle des observations satellitaires [Massart et al., 2010]. Un des défauts majeur du 4D-Var est qu'il requiert un tangent et un adjoint linéaire pour le transport. Le calcul des coefficients d'interpolation utilisé dans le schéma semi-Lagrangien (modélisant le transport) implique un important coût numérique. C'est pourquoi ces coefficients sont calculés durant la prévision du modèle et sont stockés pour être utilisés dans l'assimilation. Le tangent linéaire et l'adjoint du modèle du transport effectuent donc seulement les interpolations en utilisant les coefficients stockés précédemment, ne demandant que peu de coût de calcul. Le 4D-Var a été utilisé sur une fenêtre d'assimilation de 12h. De plus, le nombre maximum d'itérations du processus de minimisation pour chaque fenêtre d'assimilation est fixé à 50. La fonction coût est minimisée en utilisant la méthode de mémoire-limité BFGS (Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno) de [Liu and Nocedal, 1989]. L'instant où toutes les mesures, et donc la correction, sont introduites s'effectue en début de fenêtre.

#### La matrice de covariance d'erreur d'ébauche

La matrice de covariance d'erreur d'ébauche ( $\mathbf{B}$ , section 4.1) est difficile à calculer, voire impossible. Il y a tout d'abord une difficulté d'estimation puisqu'il n'y a pas assez d'informations connues. D'autres part, il est difficile de stocker une telle matrice qui comprend par exemple  $10^{16}$  termes pour une grille horizontale globale de  $2^\circ$  par  $2^\circ$  avec 60 niveaux verticaux. Caractériser cette matrice est indispensable car elle permet de répartir l'information spatialement et entre les variables.

Dans MOCAGE-VALENTINA, la matrice  $\mathbf{B}$  est calculée comme le produit :

$$\mathbf{B} = \mathbf{\Sigma} \mathbf{C} \mathbf{\Sigma}$$

avec  $\mathbf{\Sigma}$  la matrice diagonale représentant l'écart-type des erreurs d'ébauche de l'espèce assimilées en chaque point de la grille du modèle et  $\mathbf{C}$  la matrice de corrélation. La matrice  $\mathbf{C}$  est alors approximée par un opérateur linéaire de type diffusion [Weaver and Courtier, 2001]. Cela garantira une matrice  $\mathbf{B}$  symétrique et définie positive.

Deux possibilités sont disponibles pour  $\mathbf{\Sigma}$  avec MOCAGE-VALENTINA sur la représentation des variances :

- les écarts-types sont imposés comme proportionnels à l'ébauche. Les erreurs de la variable analysée varient avec sa concentration. Ce choix bien que souvent utilisé, ne repose sur aucun diagnostic statistique.

- pour générer des analyses de bonnes qualités, la matrice des écarts-types peut être obtenue par des statistiques sur des ensembles. Un exemple ainsi que de plus amples explications sont données dans [Massart et al., 2012]. Cette matrice est lue dans un fichier de données préalablement généré.

Concernant la matrice de corrélation  $\mathbf{C}$ , elle a pour effet de lisser spatialement l'information d'un point de grille à l'autre. Selon la formulation de [Weaver and Courtier, 2001], la matrice de corrélation dépend de tenseurs et d'un opérateur de diffusion  $\mathbf{L}$ . Cet opérateur de diffusion est modélisé avec la solution d'une équation de diffusion. Dans MOCAGE-VALENTINA,  $\mathbf{L}$  est séparé en composante verticale et en composante horizontale [Weaver and Courtier, 2001]. Cette séparation simplifie le calcul de la matrice de corrélation et donc minimise le coût de calcul. L'équation de diffusion est alors résolue en premier sur la sphère 2D et ensuite sur la dimension verticale (1D).

### L'opérateur d'observation

De manière générale, les observations et les points de grille du modèle n'ont pas les mêmes résolutions horizontales et verticales. L'opérateur d'observation  $\mathbf{H}(\mathbf{x})$  contient donc une étape d'interpolation.  $\mathbf{H}(\mathbf{x})$  prend en compte l'information utilisée dans l'algorithme de restitution, c'est-à-dire le profil a-priori ainsi que le lissage de l'AVK. Deux étapes sont employées pour calculer  $\mathbf{H}(\mathbf{x})$  : i) l'interpolation 3D et ii) le lissage par AVK (si besoin). L'opérateur d'observation du satellite est implémenté suivant l'équation suivante :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{A}\mathbf{x}_{mod} + (\mathbf{I} - \mathbf{A})\mathbf{x}_a \quad (4.12)$$

avec  $\mathbf{x}_a$  l'a-priori du profil d'ozone et  $\mathbf{A}$  la matrice de l'AVK du satellite utilisé.  $\mathbf{x}_{mod}$  correspond au profil d'ozone du modèle MOCAGE interpolé sur la grille d'observation (restitution).  $\hat{\mathbf{x}}$  est le profil obtenu par la procédure de restitution du satellite. Le deuxième terme de l'équation de droite ajoute dans l'opérateur d'observation la contribution de l'a-priori dans le vecteur d'innovation. L'équation peut également s'écrire :

$$\hat{\mathbf{x}} - \mathbf{x}_a = \mathbf{A}(\mathbf{x}_{mod} - \mathbf{x}_a) \quad (4.13)$$

Cette équation a été décrite dans le chapitre 3 (équation 3.15). Le terme de droite de la relation 4.13 décrit la relation entre les quantités restituées et la distribution du traceur modélisée à travers l'AVK. Les AVK décrivent la structure verticale de l'impact de l'information a-priori.

### La matrice de covariance d'erreur d'observation

La matrice de covariances d'erreur d'observation ( $\mathbf{R}$ ) est composée des variances d'erreur (termes diagonaux) et des covariances d'erreur (termes non-diagonaux).



Si plusieurs instruments sont utilisés dans l'assimilation, les covariances entre les différents instruments sont considérées nulles. Dans VALENTINA des matrices non diagonales peuvent être utilisées pour les profils. Dans les autres cas, la matrice  $\mathbf{R}$  est calculée comme étant diagonale avec les variances calculées à partir d'un écart type proportionnel à la valeur de l'observation et exprimées en pourcentage. Ce calcul est appliqué pour les données IASI alors que pour MLS, la matrice  $\mathbf{R}$  provient des produits de restitution des mesures MLS (plus de détails seront fournis dans le chapitre 5).

### **MOCAGE-VALENTINA dans la communauté scientifique**

MOCAGE-VALENTINA participe au service Européen Copernicus de surveillance de l'atmosphère (CAMS), depuis son développement et son évaluation lors du projet Européen ASSET [Lahoz et al., 2007a].

Plusieurs études ont utilisé le système d'assimilation de MOCAGE pour étudier la stratosphère et la troposphère [Pradier et al., 2006, Teyssède et al., 2007, El Amraoui et al., 2008], l'étude du trou d'ozone du vortex polaire Arctique [El Amraoui et al., 2008], concernant les échanges entre stratosphère et troposphère [Semane, 2007], la colonne totale d'ozone [Massart et al., 2009] et également pour l'étude des aérosols [Sič et al., 2015].



# Chapitre 5

## Description des simulations et validation globale

Dans cette thèse, trois simulations de la distribution d’ozone ont été réalisées sur la période 2008 à 2013. Il s’agit des six années de restitutions IASI-SOFRID mise à disposition par le Laboratoire d’Aérodynamique au commencement de cette étude en 2014. L’objectif de ce chapitre est de décrire d’une part, les trois simulations réalisées avec le modèle MOCAGE et d’autre part, leurs validations par comparaison avec les sondes d’ozone.

La première simulation est effectuée en intégrant le modèle MOCAGE sans assimilation de données. Une simulation de contrôle est alors réalisée, dite “modèle direct” ou “control run” en anglais. La deuxième simulation correspond à l’assimilation des données stratosphériques MLS. Il s’agit de l’analyse appelée “MLS-a”. Enfin, les profils stratosphériques de MLS et les colonnes troposphériques de IASI sont assimilés pour donner la simulation “IASIMLS-a”.

Le chapitre se découpe en cinq parties suivantes. Une première partie décrit les travaux déjà existants dans la littérature ayant assimilés les données troposphériques IASI (section 5.1). Les trois simulations (Mocage-Direct, l’analyse MLS et l’analyse combinant IASI et MLS) sont détaillées dans la deuxième partie de ce chapitre (5.2). Une troisième partie (5.3) présente une validation statistique globale des simulations en étudiant séparément les simulations par bande de latitude en allant des pôles ( $90^{\circ}$  S -  $60^{\circ}$  S et  $60^{\circ}$  N -  $90^{\circ}$  N) aux tropiques ( $30^{\circ}$  S -  $30^{\circ}$  N) et en passant par les moyennes latitudes ( $30^{\circ}$  S -  $60^{\circ}$  S et  $30^{\circ}$  N -  $60^{\circ}$  N). Cette validation permet de vérifier si les simulations reproduisent la variabilité temporelle de l’ozone troposphérique sur six ans et sur chacune des cinq bandes de latitudes. Elle permet également de caractériser de possibles biais entre chaque simulation par rapport aux sondes. Enfin, les résultats de ce chapitre sont récapitulés dans une conclusion.

## 5.1 Introduction

Pour quantifier correctement la variabilité spatio-temporelle de l’ozone, une détermination précise des profils d’ozone dans la basse-stratosphère et dans la troposphère est nécessaire.

L’instrument IASI, à bord de Metop-A, fournit une excellente contribution pour analyser les variations et les tendances d’ozone, du fait de sa haute stabilité radiométrique, de son échantillonnage global et de la longue durée de sa mission. Ces raisons ont conduit plusieurs études à l’utiliser pour caractériser la distribution d’ozone et sa variabilité dans la troposphère et la stratosphère [Boynard et al., 2009, Wespes et al., 2009, Barret et al., 2011]. [Wespes et al., 2016] ont étudié des séries temporelles de restitutions IASI et analysé les processus contrôlant la variabilité dans la stratosphère et dans la troposphère.

Les six premières années de IASI/Metop-A sont utilisées pour obtenir la première longue analyse d’ozone troposphérique.

Jusqu’à présent, seule l’étude de [Emili et al., 2014] a étudié l’assimilation globale des colonnes d’ozone troposphérique (TOC pour *Tropospheric Ozone Column* en anglais) de IASI sur une courte période de 6 mois. En assimilant dans une même analyse les profils stratosphériques de MLS et les colonnes troposphériques de IASI (analyse IASI+MLS), [Emili et al., 2014] ont montré que cela contraignait l’analyse d’ozone au niveau de la tropopause et dans la stratosphère en diminuant les biais par rapport aux sondes. En validant par bande de latitude, l’analyse IASI+MLS a montré d’importantes améliorations au niveau de la tropopause et de la troposphère, comparé au modèle direct et à MLS-a. L’assimilation IASI+MLS diminue l’écart-type du modèle de 40 % à 20 % dans les tropiques (30° S - 30° N). Leur étude a également montré que la combinaison de MLS et de IASI réduisait les incertitudes des colonnes d’ozone modélisées de 30 % à 15 % au niveau de l’UTLS.

Cependant, leur validation montre aussi des biais qui persistent avec une intensité plus importante dans l’hémisphère Sud (autour de 20 %) que dans l’hémisphère Nord (entre 5 % et 10 %).

Cette étude s’appuie donc sur les travaux effectués par [Emili et al., 2014] pour étudier, avec l’analyse combinant les données troposphérique IASI et stratosphérique MLS, une longue série temporelle d’ozone ainsi que la variabilité de l’ozone. La plus-value de cette étude par rapport aux travaux de [Emili et al., 2014] est d’avoir de longues séries temporelles dans le but d’observer de possible tendance ainsi que les variations saisonnières et inter-annuelles existantes. Le modèle de chimie-transport MOCAGE est également utilisé, dans cette thèse, pour assimiler les données combinées de MLS et de IASI.

Six ans de données sont utilisées (de janvier 2008 à décembre 2013), permettant ainsi la mise en évidence de la variabilité multi-annuelle de l’ozone troposphérique.

## 5.2 Méthodologie et présentation des simulations

Le modèle MOCAGE permet de nombreuses configurations avec différents domaines et résolutions. Les simulations réalisées utilisent une grille horizontale globale régulière ( $2^\circ \times 2^\circ$ ). Le nombre de niveaux verticaux est égal à 60 niveaux de type sigma-hybride, allant de la surface jusqu'à 0.1 hPa. La résolution verticale est de 700 - 800 m dans l'UTLS, de 400 m dans la troposphère libre et de 40 m dans la couche limite. Concernant les paramètres atmosphériques d'entrées (champs de vent, de température, de pression, de pression de surface et d'humidité spécifique), ils proviennent des simulations à 60 niveaux du modèle IFS (de la réanalyse ERA-Interim du ECMWF, voir la section 2.1). Enfin, le schéma chimique implémenté dans MOCAGE pour chacune des simulations est le schéma linéaire CARIOLLE, déjà présenté dans la section 2.2. Les sorties, pour chaque simulation, sont sauvegardées toutes les 6h.

Les trois simulations ainsi que des validations par rapport aux sondes sont présentées ci-après.

La comparaison des analyses par rapport aux sondes est effectuée sur les six années d'études. Les observations *in-situ* des sondes d'ozone sont issues de la base de données du centre WOUDC (<http://www.woudc.org>).

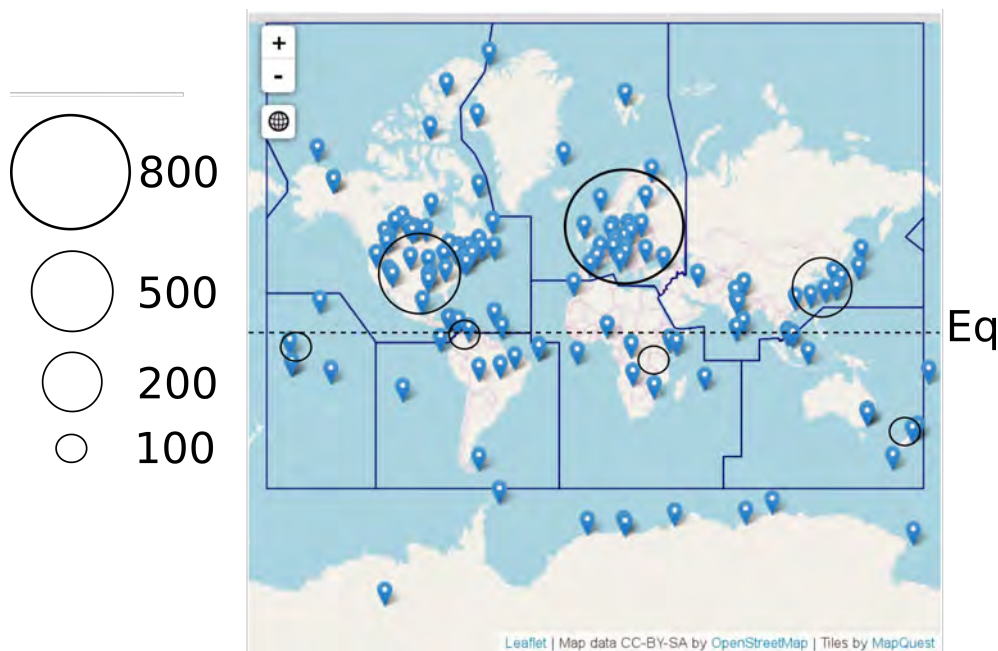


Figure 5.1: Sondes d'ozone WOUDC réparties sur le globe de 2008 à 2013.

Pour la période 2008 - 2013, toutes les données disponibles proviennent de 149 stations. Le nombre moyen de sondes global annuel est d'environ 2 398 sondes. La figure 5.1 montre la répartition des sondes WOUDC utilisées dans cette étude. Les sondes sont réparties de façon inhomogène sur le globe avec pour la plupart une répartition située dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Nord. L'erreur d'observation, qui leur est attribuée, est de 5 % à 10 % entre 0 et 30 km [Smit et al., 2007]. Ces observations *in-situ* sont prises comme référence.

La validation suit deux étapes préliminaires : i) les champs simulés sont interpolés en temps et en espace pour coïncider avec les sondages, ii) les valeurs obtenues sont ensuite moyennées tous les deux mois.

### 5.2.1 Le modèle direct

Comme pour tous les CTM, MOCAGE a besoin de concentrations initiales réalistes. Dans cette étude, la condition initiale utilisée provient d’une simulation MOCAGE, datant du 1<sup>er</sup> novembre 2007, intégrée sans assimilation de données chimiques (simulation nommée “Model Direct”). Afin d’équilibrer le modèle, il a fallu l’intégrer sur une période suffisamment longue permettant ainsi d’équilibrer correctement la dynamique atmosphérique et la chimie de l’ozone. Cette période de temps nécessaire est appelée période de *spin-up*. La période de *spin-up* dépend de l’espèce chimique considérée et dans le cas de l’ozone, deux mois (temps de vie de l’ozone dans l’atmosphère) suffisent pour les résultats du modèle qui sont analysés du 1<sup>er</sup> janvier 2008 au 31 décembre 2013.

### 5.2.2 Les analyses

Les principaux paramètres d’assimilation (présentés au chapitre précédent, section 4.3) des deux analyses sont décrits ci dessous. Les tests de paramétrages des analyses MLS-a et IASIMLS-a ont été effectués en comparant les analyses par rapport aux sondes d’ozone sur la période novembre-décembre 2008. Ces tests sont discutés et appuyés par les figures de cette section.

Dans la section 4.3, les matrices de covariance ainsi que l’opérateur d’observation ont été présentés de façon générale pour le système d’assimilation MOCAGE-VALENTINA.

Concernant la matrice de covariance d’erreur d’observation ( $\mathbf{R}$ ), les variances d’erreur d’observation entre IASIMLS-a et MLS-a sont différentes étant donné que le jeu de données entre ces deux analyses est différent du point de vue des restitutions et des instruments eux-mêmes (types de visées). Les variances d’erreur d’observation (termes diagonaux de la matrice  $\mathbf{R}$ ) sont exprimées comme 15 % des valeurs observées pour IASI [Massart et al., 2012, Emili et al., 2014]. Alors que pour les données MLS, elles prennent en compte les erreurs de chaque profil provenant des restitutions MLS.

Concernant la matrice de covariance d’erreur d’ébauche ( $\mathbf{B}$ ), il a été vu que l’opérateur de diffusion était décomposé sur la verticale et sur l’horizontale. Pour les deux analyses suivantes (IASIMLS-a et MLS-a), la longueur de corrélation horizontale est définie par deux paramètres : l’échelle méridionale et l’échelle zonale. La corrélation horizontale a été modélisée avec une échelle de longueur méridionale homogène (constante) de 2 degrés (ce qui correspond à une distance d’approximativement 200 km à l’équateur). L’échelle zonale a des valeurs variant de 500 km à l’équateur et 100 km aux pôles (figure 5.2b). Les longueurs de corrélation sont identiques pour les deux analyses, aussi bien sur la verticale que sur l’horizontale. La longueur de corrélation verticale est fixée à un point de grille correspondant à une distance inférieure à 700 m dans la troposphère, environ 800 m à la tropopause et

inférieure à 1.5 km dans la stratosphère.

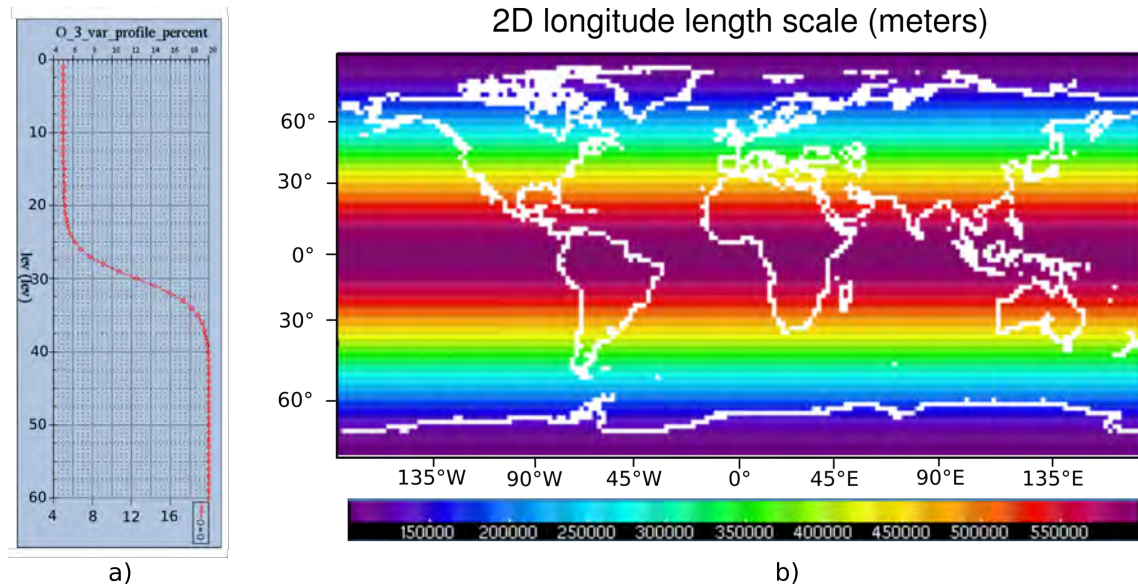


Figure 5.2: Paramétrisations principales de la matrice de covariance d'erreur d'ébauche  $\mathbf{B}$  : a) Écart-type de l'erreur d'ébauche (en %); b) Longueur de corrélation horizontale (en mètres).

Pour les deux simulations IASIMLS-a et MLS-a, la variance d'erreur d'ébauche du champ d'ozone est une matrice 3D (dépendant de la longitude, latitude et du temps). Elle est exprimée en pourcentage et suite à plusieurs validations par sondes d'ozone, elle a été prise à 20 % dans la troposphère et à 5 % dans la stratosphère (figure 5.2a). Cette variation de l'écart-type est estimée à partir d'erreurs déjà discutées et utilisées dans d'autres études telles que [Emili et al., 2014]. Le pourcentage d'erreur dans la troposphère change par rapport aux études précédentes de 30 % à 20 %, et a été déterminé par plusieurs validations globales avec des sondes d'ozone.

Pour construire la matrice de covariance d'ébauche d'erreur de IASIMLS-a et de MLS-a, le niveau de la tropopause a dû être défini suivant une valeur constante de pression. La tropopause est prise au niveau 30 de MOCAGE, correspondant en moyenne et environ à une pression de 200 hPa. Elle a été choisie à ce niveau de façon à prendre en compte aussi bien le niveau de la tropopause dans les hautes latitudes que dans les tropiques. Il s'agit d'un compromis qui peut inopportunistement introduire des erreurs sur la verticale. Ces possibles erreurs n'ont cependant pas été quantifiées.

L'opérateur d'observation de MOCAGE-VALENTINA permet d'assimiler les concentrations d'espèces en incluant les informations de l'AVK. C'est le cas de l'opérateur d'observation pour IASIMLS-a qui est calculé en prenant en compte les AVK des données de IASI.

Les AVK pour les données MLS sont proches d'une matrice d'identité (figure 5.3), signifiant que chaque niveau mesuré est assez indépendant des autres niveaux [Froidevaux et al., 2008]. [Froidevaux et al., 2008] ont montré que la présence de pics

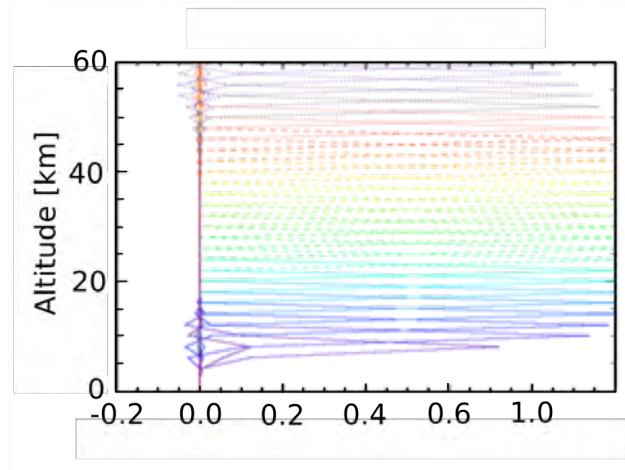


Figure 5.3: Fonctions de lissage pour les données ozone de MLS. L’axe des abscisses correspond aux valeurs de l’AVK et l’axe des ordonnées aux niveaux d’altitude en km. La mesure est sensible entre 10 km et 45 km d’altitude. Figure extraite de la lecture 1 de B. Kerridge (ESA Summer School, août 2010).

d’AVK pour les niveaux de pression restitués (de 215 à 0.5 hPa) donnait une influence négligeable des a-priori et des incertitudes dans les restitutions. Les données MLS peuvent donc être utilisées sans les averaging kernels.

### L’analyse MLS (MLS-a)

Comme mentionné dans l’article de [Emili et al., 2014], les données MLS sont utilisées pour apporter des corrections dans la stratosphère et au niveau de la tropopause puisque MLS mesure seulement au Limbe. En utilisant les profils MLS, la précision de MLS-a tend à être meilleure que le modèle direct, en particulier dans la stratosphère. Les profils MLS d’ozone stratosphérique ont été assimilés entre 12.12 hPa et 177.83 hPa (section 3.2.1).

La matrice de covariance d’erreur d’ébauche du système d’assimilation est divisée en un opérateur horizontale et verticale. Le terme horizontale a été défini précédemment. La corrélation verticale d’erreur d’ébauche est modélisée en utilisant une diffusion verticale ([Weaver and Courtier, 2001], section 4.3) où une échelle de corrélation homogène a été choisie en terme de nombre de points de grille. Dans [Emili et al., 2014], la longueur de corrélation verticale d’erreur d’ébauche (**L**) était prise comme étant une constante égale à 1 point de grille. En réalisant les premières validations statistiques globales de MLS-a, sur une courte période de 1 mois, il s’est avéré que des biais apparaissaient au niveau de la tropopause (figure 5.4a).

Les biais présents pour l’analyse “MLS-a  $L = 1$ ” (figure 5.4a) ainsi que l’erreur quadratique moyenne (figure 5.4c), plus importants que pour le modèle direct vers 300 hPa, peuvent avoir pour cause : une longueur de corrélation excessive, corrélant les fortes valeurs d’ozone dans la stratosphère aux valeurs d’ozone dans la haute troposphère.



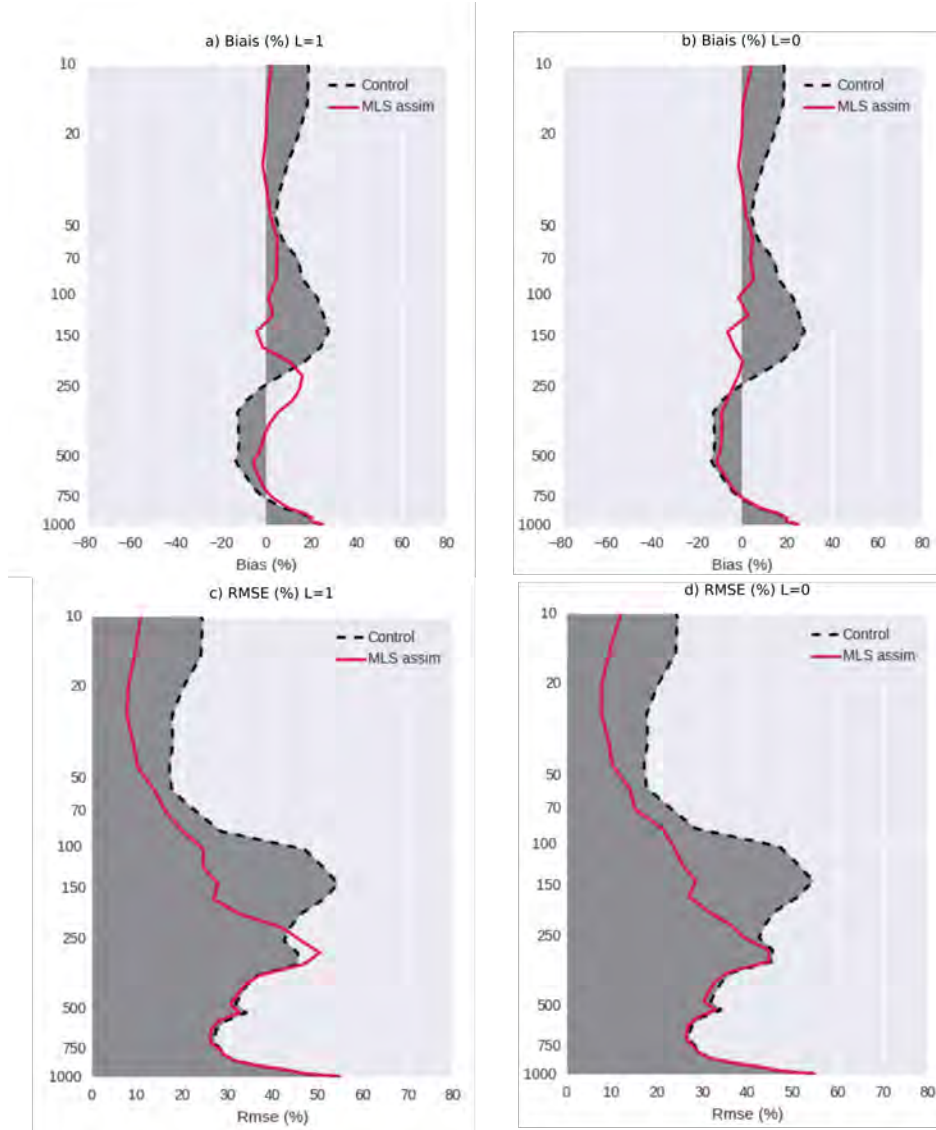


Figure 5.4: Validation globale pour le modèle direct (en noir) et MLS-a (en rouge), contre les profils de sondes. Les différences ont été normalisées avec un profil d'ozone climatologique [Paul et al., 1998]. Le biais (en %) représenté dans les courbes a) et b) pour : MLS-a avec  $L = 1$  et MLS-a avec  $L = 0$ . L'erreur quadratique moyenne (RMSE en anglais, en %) représenté dans les courbes c) et d) pour : MLS-a avec  $L = 1$  et MLS-a avec  $L=0$  respectivement. La période d'échantillonnage moyennée est comprise entre le 1<sup>er</sup> novembre 2008 au 31 décembre 2008. Le nombre de radiosondages pour cette période est de 304.

Après plusieurs validations et comparaisons entre différentes valeurs de la longueur de corrélation, deux cas de figures apparaissent :

- Si  $L = 0$ , alors il n'y a plus de corrélation verticale et de diffusion de l'incrément d'assimilation entre la stratosphère et la troposphère (figure 5.4b,d).
- Si  $L = 1$ , alors les données de la stratosphère interagissent avec celles de la troposphère.

Le pourcentage de biais dans la couche limite atmosphérique (autour de 20 %)

reste identique quelle que soit la valeur de la longueur de corrélation. La validation globale avec une longueur de corrélation nulle sur la verticale (figure 5.4b,d), montre une diminution des biais au niveau de la tropopause vers 250 - 300 hPa de 15 % à 5 %. L'erreur quadratique moyenne est également réduite par rapport au modèle direct au niveau de la tropopause de 5 %.

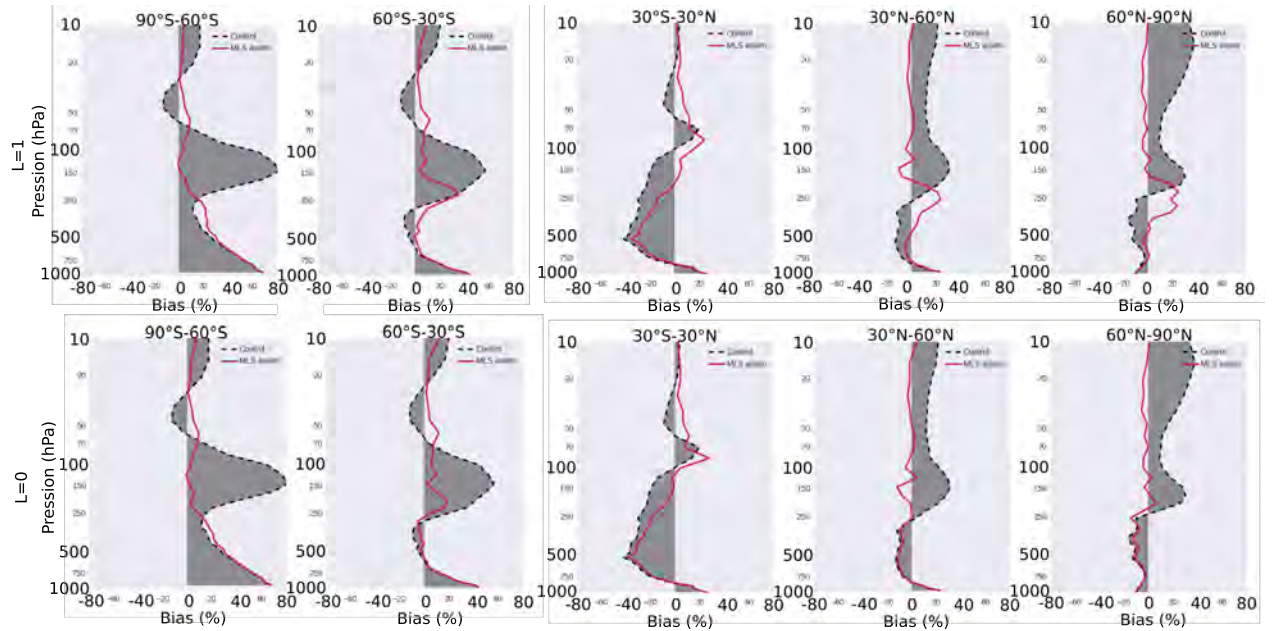


Figure 5.5: Même validation que la figure 5.4 mais ne représentant seulement que le biais (en %) et par bande de latitude de l'hémisphère Sud (à gauche 90° S - 60° S) vers l'hémisphère Nord (à droite 60° N - 90° N). Les courbes du haut, MLS-a avec  $L=1$ ; et les courbes du bas, MLS-a avec  $L=0$ . La période de validation est la même que dans la figure 5.4.

En utilisant une longueur de corrélation nulle, la réduction de biais au niveau de la tropopause (entre 100 hPa et 300 hPa selon les latitudes) s'observe également (figure 5.5). Quelque soit la valeur de la longueur de corrélation  $L$ , les données MLS apportent une correction dans la basse mésosphère et dans la stratosphère, pour chaque bande de latitude. Pour ce qui est de la troposphère libre et de la couche limite, les biais entre le modèle direct et MLS-a sont identiques, quelque soit la valeur de  $L$  : les biais atteignent 60 % dans l'hémisphère Sud alors qu'ils restent inférieurs à 30 % dans l'hémisphère Nord. La portée des données MLS étant faible dans la troposphère, il n'y a aucune correction avec MLS-a dans la couche limite et la troposphère libre.

Avec une longueur de corrélation nulle, les biais sur la verticale sont réduits pour chaque bande de latitude dans l'analyse MLS-a d'environ 20 %. Une longueur de corrélation variable sur la verticale avec un niveau de tropopause dépendant de la latitude a cependant été testé sur une période de 2 mois (voir Annexe C). Peu d'améliorations ont été apportées au niveau de la tropopause avec cette longueur variable. La valeur de corrélation nulle est donc utilisée durant toute la thèse aussi bien pour MLS-a que pour l'analyse IASIMLS-a.

## L'analyse IASI-MLS (IASIMLS-a)

Pour la simulation IASIMLS-a, les mêmes données MLS ont été utilisées. La longueur de corrélation verticale est également prise à zéro, tout comme dans l'analyse MLS (section 5.2.2).

### 1. Les colonnes troposphériques

À partir des profils de restitutions IASI, disponibles du sol jusqu'à 0.1 hPa sur 43 niveaux, des colonnes troposphériques ont été calculées seulement entre le sol (1015 hPa) et 350 hPa afin d'assimiler uniquement des colonnes troposphériques. En ayant utilisé une colonne troposphérique et non pas les profils de IASI, cela permet de réduire le coût en calcul de l'analyse. Le niveau de pression, situé à 350 hPa, est suffisant étant donné que les AVK vont atteindre le sommet de la troposphère et diffuser l'information verticalement même en ayant pris une longueur de corrélation d'erreur nulle. Les pixels de IASI avec des DFS (se référer à la section 3.3.5) inférieurs à 0.2, ont également été retirés. La valeur 0.2 a donné le meilleur compromis pour enlever des pixels ayant une difficulté surfacique (déserts, neige, glace) et également en terme de qualité d'analyse.

### 2. Réduction de 10 % de biais

L'analyse IASIMLS-a a été effectuée sur 6 ans à l'échelle du globe. La validation par rapport aux sondes a montré d'importants biais, particulièrement dans les hautes latitudes des deux hémisphères, ne permettant pas d'exploiter l'analyse (non montrée). [Emili et al., 2014] a justifié l'utilisation d'une réduction de 10 % de biais dans l'analyse IASIMLS-a pour une période de 6 mois. Suite aux premiers résultats (non montrés), cette réduction de 10 % a été appliquée sur la colonne troposphérique de IASI-SOFRID pour diminuer les biais. Ces auteurs ont montré qu'en retirant globalement des observations de IASI-SOFRID un biais constant et positif de 10 %, l'erreur quadratique moyenne de l'analyse diminuait de 20 % aux tropiques et de 22 à 17 % dans l'hémisphère Nord. Cette réduction des biais et l'amélioration de la variabilité par rapport aux sondes sont également observées avec l'analyse IASIMLS-a pour les 6 ans d'études (figures non montrées).

En insérant les données IASI dans l'analyse MLS, une diminution des biais dans la troposphère est attendue puisqu'elle serait corrigée par les observations de IASI.

En comparant l'analyse IASIMLS-a aux sondes d'ozone, en moyennant sur tout le globe et sur deux mois de l'année 2008, les biais sur la verticale (1013 hPa à 10 hPa) sont réduits par rapport au modèle direct particulièrement entre 500 hPa et 10 hPa. Il y a peu d'impact entre le sol et 500 hPa (figure 5.6a). Les biais dans la stratosphère générés par le modèle direct (de 10 % à 25 %) sont corrigés par les profils stratosphériques de MLS utilisés dans IASIMLS-a. Les biais avec IASIMLS-a sont inférieurs à 5 % dans la troposphère libre alors qu'ils sont de l'ordre de 15 - 20 % dans la couche limite. Dans la troposphère, l'impact

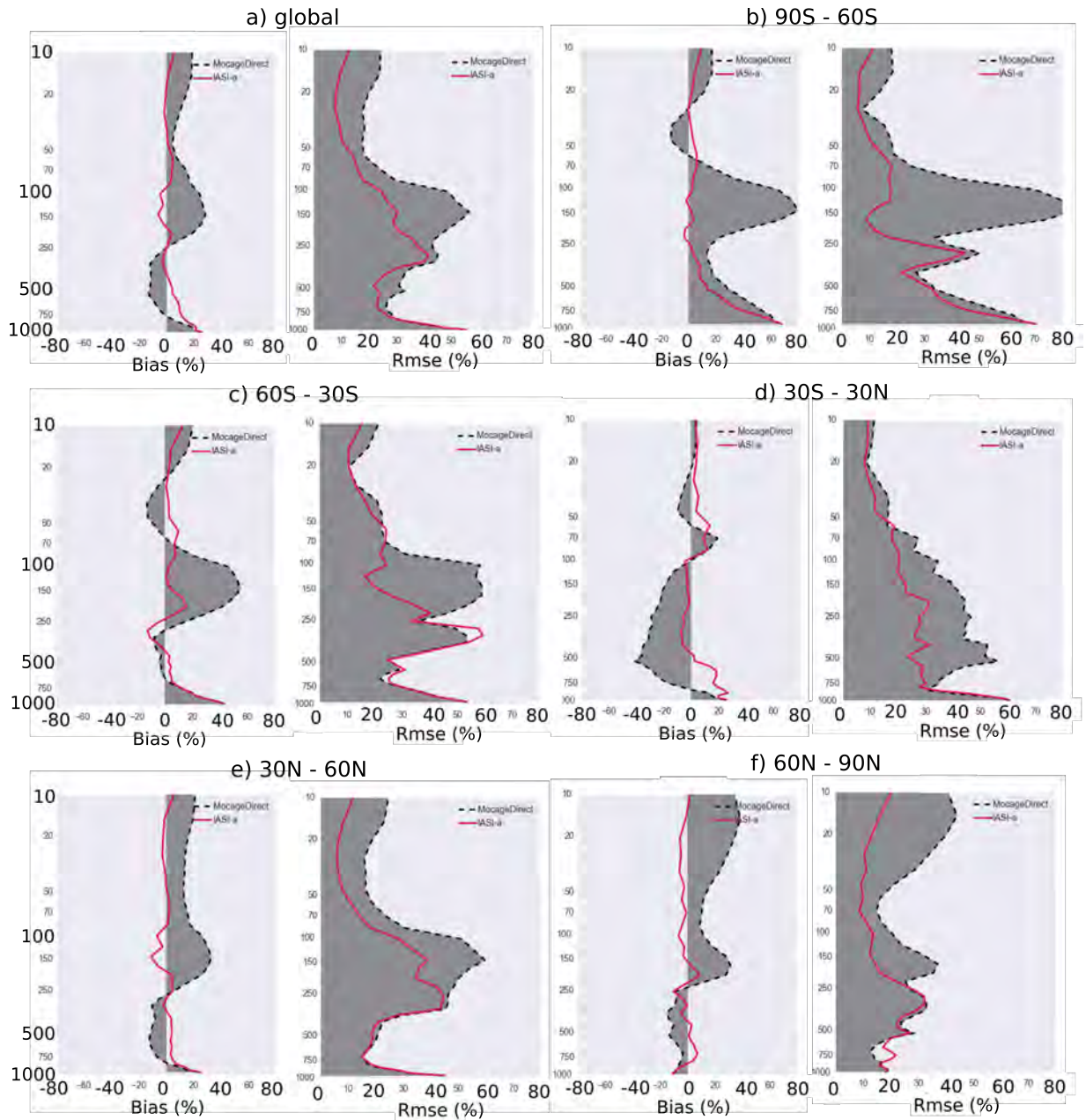


Figure 5.6: Validation du biais ( %) et du RMSE ( %) pour le modèle direct (en noir) et IASIMLS-a (en rouge) contre les profils de sondes pour le globe et par bande de latitude : a) Globe; b) 90° S - 60° S; c) 60° S - 30° S; d) 30° S - 30° N; e) 30° N - 60° N; f) 60° N - 90° N. La période d'échantillonnage moyennée est comprise entre le 1<sup>er</sup> novembre 2008 au 31 décembre 2008.

des colonnes troposphériques de IASI est marqué aussi bien par la diminution des biais que par la diminution de l'erreur quadratique moyenne (RMSE), sauf dans la couche limite où il reste identique au modèle direct. Cette correction dans la troposphère s'observe pour l'hémisphère Nord (figure 5.6e et f) dont le biais n'excède pas 5 - 10 % avec IASIMLS-a, au lieu de 15 - 20 % pour le modèle direct. Pour l'hémisphère Sud (figure 5.6b,c), les biais sont également diminués par rapport au modèle direct mais atteignent l'un comme l'autre

des biais jusqu'à 80 % dans la couche limite. La présence de biais dans la couche limite résulte du manque de reproduction d'émissions de surface par le schéma linéaire CARIOLLE utilisé. Dans les tropiques (figure 5.6d), et en regardant seulement la troposphère libre située environ de 750 hPa à 100 hPa, IASIMLS-a donne des concentrations d'ozone plus proches des sondes que le modèle direct avec un biais moyen de 5 % environ.

L'apport des données stratosphériques MLS et troposphériques IASI apparaît également dans les valeurs du RMSE où une diminution de 15 - 20 % en moyenne (figure 5.6) est obtenue avec IASIMLS-a sur la verticale comparé au modèle direct. En analysant par bande de latitude, le RMSE de IASIMLS-a est meilleur dans les tropiques mais il reste cependant inférieur au modèle direct, en moyenne, pour toutes les autres latitudes, bien qu'il soit plus important dans l'hémisphère Sud que dans l'hémisphère Nord. La présence d'un biais et d'un RMSE élevé dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Sud avec IASIMLS-a, avait également été souligné par [Emili et al., 2014] sur une période de 6 mois (juillet à décembre 2008). Plusieurs raisons peuvent expliquer ce biais, cependant la validation précédente n'étant appliquée que sur 2 mois, il n'est pas évident d'en identifier les causes. Il est alors important de regarder ce qu'il en est avec la validation effectuée sur 6 ans (validation de la section 5.3).

L'analyse IASIMLS-a, par l'insertion des données troposphériques de IASI, apporte une importante correction par rapport à MLS-a. Ainsi, dans IASIMLS-a, les données MLS corrigent l'analyse dans la stratosphère et dans l'UTLS, alors que les données IASI corrigent la troposphère particulièrement dans l'hémisphère Nord et les tropiques.

### 5.3 Evolution de la colonne d'ozone troposphérique sur la période 2008-2013

Dans cette section l'évolution de la TCO est étudiée, sur la période 2008 - 2013 par bande de latitude, des pôles ( $90^\circ$  S -  $60^\circ$  S et  $60^\circ$  N -  $90^\circ$  N) en passant par les moyennes latitudes jusqu'aux tropiques ( $30^\circ$  S -  $30^\circ$  N).

L'évaluation des résultats des trois simulations (MD, MLS-a et IASIMLS-a) est effectuée en comparant les concentrations d'ozone des analyses par rapport aux sondes.

Les statistiques sont calculées pour la colonne troposphérique comprise entre 1000 hPa et 345 hPa (équivalent à 0 - 8 km environ) correspondant aux colonnes troposphériques de IASI-SOFRID assimilées dans MOCAGE pour l'analyse IASIMLS-a.

Le but des validations statistiques réalisées est d'estimer si les séries temporelles d'ozone obtenues par les simulations sont compatibles avec les radiosondages, pour toutes les données disponibles du globe.

Chaque série temporelle de la colonne troposphérique partielle (1000 hPa - 345 hPa) est analysée par bande de latitude allant des pôles jusqu'aux tropiques.



## Les pôles

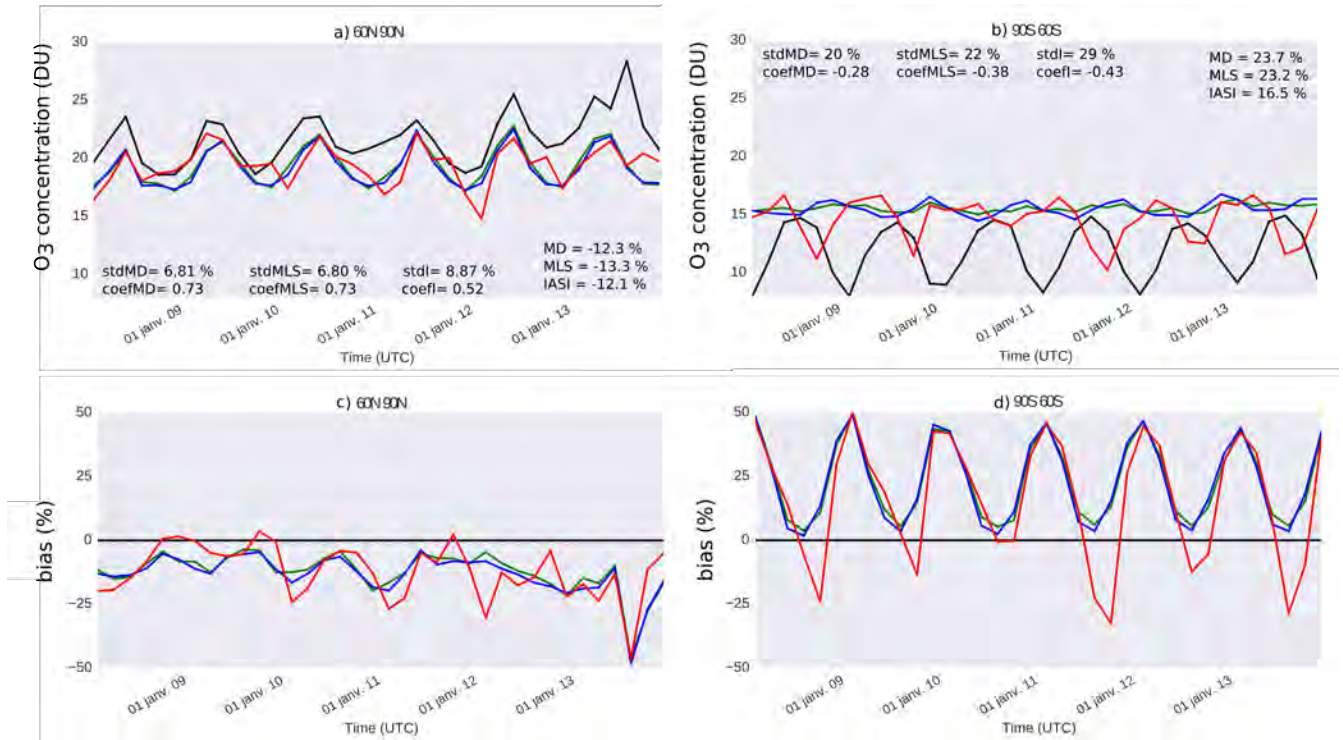


Figure 5.7: Comparaison des séries temporelles de colonne troposphérique (1000 hPa à 345 hPa) entre les sondes (en noir) et le modèle direct (en vert), MLS-a (en bleu), IASIMLS-a (en rouge). La concentration d'ozone (en DU) est montrée en haut et les biais (en %) sont montrés en bas, pour le pôle Nord (à gauche) et le pôle Sud (à droite). Dans les deux figures du haut, les coefficients de corrélation, l'écart-type et les biais sont exprimés pour les trois simulations et pour la période de 6 ans (2008 - 2013).

La figure 5.7 montre les concentrations d'ozone (en DU) et les différences relatives au pôle Sud et au pôle Nord pour les trois simulations (modèle direct, MLS-a et IASIMLS-a).

On observe d'après les concentrations des sondages, une différence de concentration, avec des valeurs deux fois plus élevées dans l'hémisphère Nord (22 DU en moyenne, figure 5.7a) que dans l'hémisphère Sud (12 DU en moyenne, figure 5.7b). Il existe par ailleurs une saisonnalité avec des maxima en été/automne dans l'hémisphère Sud et en hiver/printemps dans l'hémisphère Nord. La différence de concentration entre l'hémisphère Sud et l'hémisphère Nord, s'explique par l'intrusion d'air stratosphérique dans la colonne 1000 - 345 hPa due à une hauteur de tropopause plus basse dans l'hémisphère Nord. Ce niveau de tropopause plus bas résulte de la circulation de Brewer-Dobson qui transporte l'air tropical riche en ozone vers les hautes latitudes de l'hémisphère d'hiver [Dobson, 1956]. La présence de maxima d'ozone durant l'été et l'automne de l'hémisphère Sud provient de la circulation de Brewer-Dobson. La circulation de Brewer-Dobson est générée par des ondes planétaires stationnaires dans les moyennes latitudes et elle se produit seulement dans l'hémisphère d'hiver quand le vortex polaire stratosphérique s'est formé [Chipperfield and Jones, 1999]. Ce transport est particulièrement intense dans l'hémisphère

Nord et dure jusqu'au printemps, puisque les ondes planétaires sont renforcées par les surfaces terrestres plus importantes que dans l'hémisphère Sud [Moh, 2008]. L'hémisphère Sud est entièrement composé d'océan de 55° S jusqu'au continent Antarctique, conduisant à isoler le vortex polaire et donc à réduire l'activité de la circulation de Brewer-Dobson. Il y a donc plus d'ozone transporté vers l'Arctique que vers l'Antarctique.

Cette différence de concentrations est également perçue par les trois simulations (figure 5.7a,b). Cependant un biais persiste dans les deux hémisphères, plus important dans l'hémisphère Sud (figure 5.7d) que dans l'hémisphère Nord (figure 5.7c). L'analyse IASIMLS-a est moins biaisée (12.1 % dans l'hémisphère Nord et 16.5 % dans l'hémisphère Sud) que pour le modèle direct et MLS-a. Une légère différence apparaît entre l'analyse MLS-a et le modèle direct due à l'impact des données stratosphériques MLS. Les données IASI apportent une importante contribution à la simulation IASIMLS-a, puisque la différence relative par rapport aux sondes est réduite de 6 % dans l'hémisphère Sud par rapport à celle de MLS-a et du modèle direct. La différence relative n'est meilleure que de 1 % dans l'hémisphère Nord. A noter, de plus, que dans l'hémisphère Sud, les simulations sur-estiment les concentrations d'ozone, alors que dans l'hémisphère Nord, elles les sous-estiment.

La variabilité des trois simulations est meilleure dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud. Dans l'hémisphère Nord, ce sont les simulations modèle direct et MLS-a qui se rapprochent le plus des sondes pour la variabilité temporelle, avec un coefficient de corrélation identique entre les deux simulations de 0.73 et un écart type de 6.80 % au lieu de 8.87 % pour IASIMLS-a (et un coefficient de corrélation de 0.52). Les surfaces désertiques, océaniques et ayant de la glace rendent la sensibilité verticale de IASI inférieure à celle présente au-dessus des terres [Clerbaux et al., 2009, Pommier et al., 2012]. Il se peut que la fiabilité des données IR de IASI soit alors dégradée dans les hautes latitudes, pouvant expliquer une variabilité plus éloignée des sondes au niveau des pôles Sud et Nord. Dans l'hémisphère Sud, l'analyse IASIMLS-a possède une mauvaise variabilité décalant les épisodes d'extrema par rapport à ceux des sondes. Il en est de même pour MLS-a et le modèle direct.

Alors qu'aucune variabilité saisonnière n'est aperçue avec modèle direct et MLS-a, une variabilité est présente dans IASIMLS-a avec cependant un décalage saisonnier des extrema.

### Les moyennes latitudes

La figure 5.8 représente les concentrations d'ozone (en DU) ainsi que les différences relatives pour les trois simulations et les sondes dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Nord (30° N - 60° N) et de l'hémisphère Sud (60° S - 30° S).

Une différence de concentrations d'ozone est perceptible entre les moyennes latitudes de l'hémisphère Nord (figure 5.8a) et de l'hémisphère Sud (figure 5.8b). Les valeurs prédominantes d'ozone des moyennes latitudes se trouvent dans l'hémisphère Nord (22 DU au lieu de 16 DU dans l'hémisphère Sud). Les valeurs importantes d'ozone de l'hémisphère Nord coïncident avec la présence de grandes villes (sources d'ozone anthropiques) et de surfaces continentales plus importantes dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud. Une saisonnalité apparaît également, opposée entre

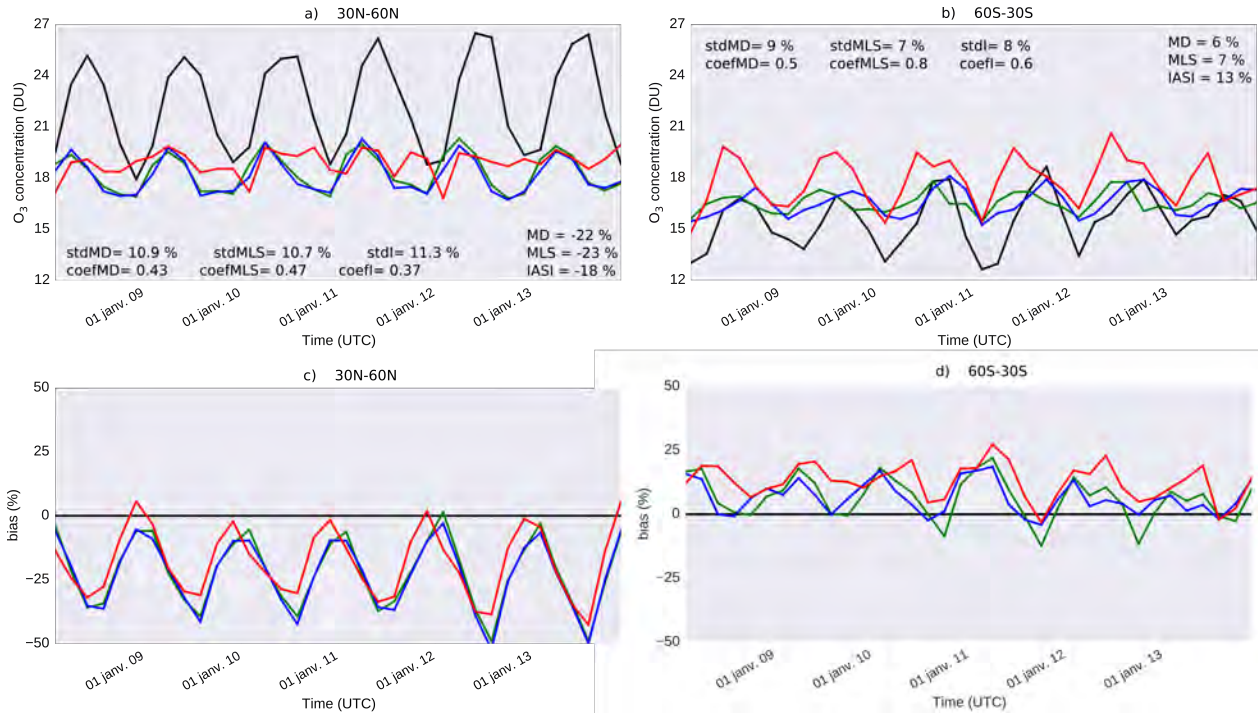


Figure 5.8: Idem que pour la figure 5.7 mais pour les bandes de latitudes 60° S - 30° S (a et c) et 30° N - 60° N (b et d).

les deux hémisphères, avec des pics d’ozone durant le printemps/été de l’hémisphère Nord et durant l’été austral. Les hautes valeurs d’ozone troposphérique durant les mois de septembre et octobre, dans l’hémisphère Sud, s’expliquent par le changement de transport à l’échelle planétaire des masses d’air riche en ozone et par les sources de production d’ozone incluant les éclairs [Sauvage et al., 2007], les feux de combustion (voir chapitre 1), les émissions du sol et les combustions fossiles [Ziemke et al., 2011]. Comme pour les hautes latitudes, les trois simulations marquent cette différence de concentrations entre l’hémisphère Sud et l’hémisphère Nord avec la présence d’un biais plus ou moins important selon les simulations. Dans l’hémisphère Nord, ce biais atteint 18 % pour IASIMLS-a et 22 - 23 % pour MLS-a et le modèle-direct. Il est moins important pour l’hémisphère Sud en terme de valeur, mais il est plus élevé avec IASIMLS-a (13 %) qu’avec MLS-a et le modèle-direct (6 - 7 %). Par ailleurs, les trois simulations surestiment les concentrations d’ozone dans l’hémisphère Sud alors que dans l’hémisphère Nord elles sous-estiment les concentrations d’ozone.

Concernant la variabilité, elle est meilleure pour les moyennes latitudes de l’hémisphère Sud que de l’hémisphère Nord mais elle reste éloignée de celle des sondes pour IASIMLS-a. Dans l’hémisphère Nord, IASIMLS-a a l’écart-type le plus élevé (11.3 %) et un coefficient de corrélation faible (0.37). Il apparaît que MLS-a a sur les trois simulations la meilleure variabilité. Dans l’hémisphère Sud, cette même conclusion apparaît.

Les données IASI semblent corriger la simulation dans l’hémisphère Nord mais elles amènent d’importantes différences par rapport aux sondes dans l’hémisphère Sud.



La présence de biais et d'une mauvaise variabilité dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Sud et au pôle Sud, avec IASIMLS-a, perdurent durant les six ans d'études (2008 - 2013). Ces biais induits par les données IASI ne sont donc pas seulement observables pour une courte période donnée [Emili et al., 2014] mais s'observent sur plusieurs années. Les données IASI ajoutent, par rapport aux sondes et au modèle direct et MLS-a, des biais aussi bien pour le pôle Nord que le pôle Sud. Malgré la réduction de 10 % de biais appliquée sur les restitutions IASI (cf. paragraphe 1 de la page 77), des biais dans l'analyse IASIMLS-a sont toujours présents dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Sud et sont supérieurs à ceux du modèle direct. Plusieurs raisons peuvent expliquer ce biais mais il existe une source d'erreur pouvant affecter les analyses IASIMLS-a provenant directement des restitutions IASI. En effet le profil a-priori utilisé pour fournir les restitutions IASI-SOFRID est calculé en moyennant les radiosondages WOUDC en 2008, complétés par les données stratosphériques de MLS (cf. chapitre 3). Or la plupart des radiosondages sont effectués dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Nord fournissant au profil a-priori une tropopause correspondante à ces latitudes. La tropopause et donc le profil a-priori ne seraient pas adaptés pour les hautes latitudes et particulièrement pour l'hémisphère Sud. Ce point de discussion sera étudié dans le chapitre 7.

### Les tropiques

Pour finir, la dernière bande de latitude correspond à celle des tropiques (entre 30° S et 30° N). La figure 5.9 montre les concentrations d'ozone et les différences relatives entre les trois simulations et les sondes pour les tropiques.

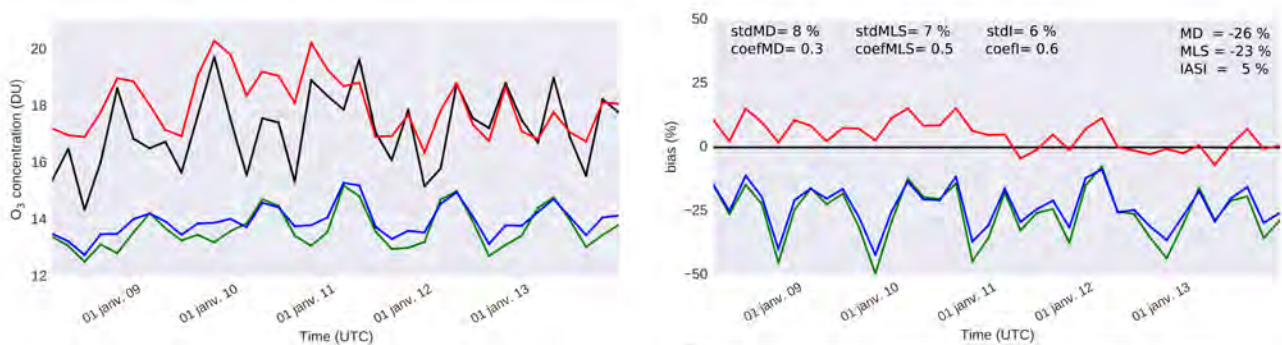


Figure 5.9: Idem que pour la figure 5.7 mais pour la bande de latitude 30° S - 30° N.

Comparée aux autres bandes de latitudes, il n'existe plus une variabilité saisonnière constante. Deux pics d'ozone émergent chaque année : l'un au printemps et l'autre en automne. La présence de ces deux maxima résulte de la *Quasi-Biennial Oscillation* (QBO) subtropicale qui présente une asymétrie entre les deux hémisphères [Jones et al., 1998]. En effet la circulation méridionale induite par la QBO est toujours plus intense dans l'hémisphère d'hiver [Jones et al., 1998, Fadnavis et al., 2008]. Cependant d'une année sur l'autre, les taux de concentrations diffèrent. Ces pics d'ozone proviennent principalement des feux de biomasse qui sont

l'un des forçages majeurs de la chimie troposphérique tropicale. De plus, c'est durant les saisons chaudes que le maximum de lumière solaire influence la production de précurseurs d'ozone tropicale (éclairs). Cependant, la réduction d'ozone troposphérique dans les tropiques reflète le transport et la production chimique de sources extra-tropicales [Sauvage et al., 2007].

Des trois simulations, ce sont les concentrations d'ozone de IASIMLS-a qui se rapprochent le plus des concentrations des sondes, avec un biais de 5 % au lieu de 23 % à 26 % pour MLS-a et modèle-direct respectivement. De plus, le modèle direct et MLS-a reproduisent difficilement la variabilité associée aux sondes, où seul le maximum au printemps est perçu par les deux simulations. Ce manque de variabilité par MLS-a et modèle-direct est également souligné par un écart-type relatif de 8 et 7 % contre 6 % pour IASIMLS-a. De plus, le coefficient de corrélation est meilleur avec IASIMLS-a (0.6) qu'avec MLS-a (0.5) et modèle-direct (0.3). Dans la bande tropicale, les données IASI améliorent donc considérablement la simulation aussi bien pour les concentrations moyennes d'ozone que pour sa variabilité.

### Récapitulatif sur la variabilité

Les figures précédentes ont permis d'une part de mettre en évidence les biais relatifs existants entre les simulations et les sondes et d'autre part de quantifier les corrélations entre ces deux jeux de données.

La figure 5.10 récapitule dans un diagramme de Taylor, les diagnostics de variabilité par bande de latitude, en traçant la corrélation  $R$  en fonction de l'écart-type (STD). La période de six ans, étendue de janvier 2008 à décembre 2013, permet d'accumuler suffisamment de profils de sondes afin de valider les simulations pour les cinq différentes bandes de latitudes. Le diagramme de Taylor représente la capacité de chaque simulation à détecter ou non la variabilité mesurée par les radiosondages.

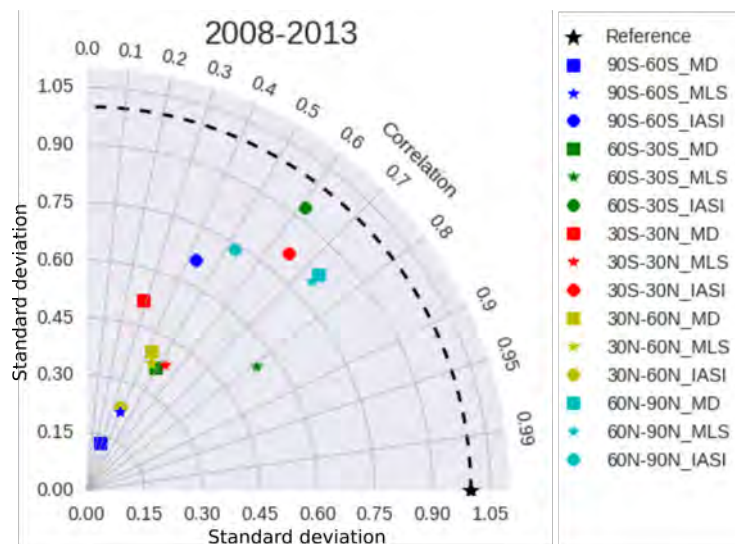


Figure 5.10: Validation zonale avec un diagramme de Taylor de la colonne troposphérique (1000 - 345 hPa) pour les simulations modèle-direct (carré), MLS-a (étoile) et IASIMLS-a (rond) contre les sondes d'ozone et pour la longue période de 6 ans (2008 - 2013).

La variabilité de MLS-a, comparée à celle du modèle direct, est meilleure dans les bandes de latitudes comprises entre  $90^\circ$  S -  $60^\circ$  S et  $60^\circ$  S -  $30^\circ$  S. Pour les autres bandes, hors hémisphère Sud, la variabilité de MLS-a est meilleure que celle du modèle direct. Alors que les biais pour IASIMLS-a sont plus importants dans l'hémisphère Sud que dans l'hémisphère Nord (figure 5.7), c'est l'inverse concernant la variabilité. En regardant la figure 5.10, il s'avère que pour  $30^\circ$  N -  $60^\circ$  N et  $60^\circ$  N -  $90^\circ$  N, IASIMLS-a a une variabilité moins bonne que le modèle direct ou MLS-a. Pour le pôle Sud ( $60^\circ$  S -  $90^\circ$  S) ainsi que pour  $60^\circ$  S -  $30^\circ$  S et les tropiques ( $30^\circ$  S -  $30^\circ$  N), la variabilité de IASIMLS-a est meilleure que celle des deux autres simulations. Les données de IASI corrigent donc particulièrement bien la faible variabilité du modèle direct. Ces conclusions sur la variabilité de IASIMLS-a sont semblables à celles obtenues par [Emili et al., 2014] sur une période de six mois.

## 5.4 Conclusions

Dans ce chapitre, trois simulations ont été présentées, comparées et validées, permettant de quantifier l'apport de IASI pour des réanalyses de l'ozone troposphérique. Pour la première fois, les données troposphériques de IASI et stratosphériques de MLS ont été assimilées sur une longue période temporelle (simulation IASIMLS-a). Cette simulation, a été produite avec le schéma linéaire chimique CARIOLLE dans le modèle de chimie transport MOCAGE. Le système d'assimilation 4D-Var a été utilisé pour la simulation IASIMLS-a et pour la simulation MLS-a (qui comprend seulement l'assimilation des données MLS stratosphériques). À partir des comparaisons et validations avec la simulation du modèle direct (c'est-à-dire sans assimilation de données), la valeur ajoutée respective des données d'ozone de IASI et de MLS a été quantifiée. La validation de ce chapitre repose sur la comparaison avec les sondes d'ozone prises comme référence. Pour les trois simulations (modèle-direct, MLS-a et IASIMLS-a), des validations statistiques ont été effectuées sur les cinq bandes latitudinales suivantes :  $90^\circ$  S -  $60^\circ$  S,  $60^\circ$  S -  $30^\circ$  S,  $30^\circ$  S -  $30^\circ$  N,  $30^\circ$  N -  $60^\circ$  N et  $60^\circ$  N -  $90^\circ$  N.

Le modèle direct reproduit une faible variabilité saisonnière d'ozone et n'atteint pas les extrema d'ozone pour chaque bande de latitude. Bien que les données ECMWF introduites dans le CTM MOCAGE fournissent la dynamique atmosphérique dans les simulations, l'apport de données supplémentaires est nécessaire afin de décrire la variabilité et le taux de concentration d'ozone observés par les sondes. Les données stratosphériques MLS améliorent le profil vertical d'ozone, comparées au modèle direct, en corrigeant les biais perçus dans la stratosphère. Par ailleurs, les biais présents dans la région de l'UTLS sont corrigés avec les données MLS qui améliorent la description des échanges d'air entre la basse stratosphère et la haute troposphère. Mais c'est en assimilant aussi bien les données troposphériques IASI que les données stratosphériques MLS, que d'importantes corrections apparaissent sur toute la verticale (section 5.2.2). En effet, la précision des données troposphériques de IASI apporte des informations contribuant à diminuer les biais présents dans la haute troposphère. Les données IASI ayant une faible sensibilité dans la couche limite, l'analyse IASIMLS-a suit le profil du modèle direct dans les

basses couches de la troposphère.

Les validations par bandes de latitudes pour la période 2008 à 2013, ont confirmé les conclusions de [Emili et al., 2014]. Bien que les biais soient moins importants dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud, IASIMLS-a ne permet pas de décrire la variabilité temporelle de la concentration troposphérique d'ozone dans les hautes latitudes. Vers les pôles, les biais deviennent de plus en plus importants avec IASIMLS-a. De même, la variabilité du modèle MOCAGE s'éloigne de celles des sondes dans l'hémisphère Sud. Dans l'hémisphère Nord, les biais et la variabilité de IASIMLS-a sont certes meilleurs que ceux dans l'hémisphère Sud mais n'en restent pas moins éloignés des sondes. De plus, la précision de IASIMLS-a est plus faible que celle de MLS-a. Dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Sud, l'utilisation des données IASI-SOFRID ajoute un biais constant supplémentaire par rapport aux deux autres analyses. Plusieurs raisons peuvent expliquer ces biais. Une cause possible peut provenir du profil a-priori utilisé dans les restitutions IASI-SOFRID. L'existence d'un biais provenant du profil a-priori, utilisé pour les restitutions SOFRID, sera considérée et discutée dans le chapitre 7.

Cependant, les validations ont montré qu'il existait une bonne corrélation mensuelle entre IASIMLS-a et les sondes dans les tropiques (entre 30° S et 30° N). De faibles biais apparaissent dans les tropiques par rapport aux sondes, comparées à la simulation MLS-a. Les données troposphériques de IASI et stratosphériques de MLS ont donc un impact important dans l'assimilation entre 30° S et 30° N. En assimilant les données IASI et MLS, une correction est apportée aussi bien pour les différences relatives que pour la variabilité saisonnière dans la région tropicale.

Les bons résultats obtenus par l'assimilation des données IASI dans les tropiques ont conduit à compléter la validation des simulations par l'étude des modes de variation de la dynamique tropicale et de son influence sur la distribution de l'ozone. C'est l'objet du chapitre 6 suivant, avec notamment la réponse de l'ozone au phénomène El Nino.



## Chapitre 6

# Assimilation pluriannuelle des restitutions d’ozone IASI et MLS : variabilité de l’ozone troposphérique sur les tropiques en réponse à l’ENSO

Ce chapitre s’appuie sur l’article de Peiro et al., soumis à la revue *Atmospheric Chemistry and Physics*. La section 6.1 est un résumé en français de l’article présenté dans les sections allant du 6.2 au 6.6. La section 6.7 présente en français les conclusions et perspectives de l’article.

## 6.1 Résumé de l'article

Ce chapitre présente une étude sur la variabilité de l'ozone troposphérique au-dessus de l'océan Pacifique tropical avec les trois simulations (modèle direct (MD), MLS-a et IASIMLS-a) présentées dans le chapitre précédent. La période d'étude est comprise entre 2008 et 2013.

Le chapitre précédent a montré que l'analyse IASIMLS-a, comparée aux sondes d'ozone issues de la base de données WOUDC de 2008 à 2013, présentait de faibles biais et une meilleure variabilité dans les tropiques (entre 30° S et 30° N) par rapport aux autres bandes de latitudes. Pour poursuivre la validation de IASIMLS-a dans les tropiques, un événement particulier de forte variabilité doit être analysé avec IASIMLS-a afin d'observer que l'analyse reproduit bien cette variabilité.

Cet événement ponctuel étudié est El Niño-Southern Oscillation (ENSO, se reporter au chapitre 1). Il est caractérisé par deux oscillations de la circulation tropicale (El Niño et La Niña) survenues très proches l'une de l'autre en janvier 2010 et janvier 2011 respectivement et caractérisant un unique événement ENSO [Kim et al., 2011]. L'ENSO affecte les champs atmosphériques tropicaux avec en particulier un fort impact sur la composition atmosphérique [Chandra et al., 2002, Ziemke, J. R. and Chandra, 2003, Inness et al., 2015]. L'ENSO influence la circulation de Walker, apportant des changements sur la localisation de la convection, des précipitations et des feux de biomasse. Les feux de biomasses étant la source majeure des précurseurs en gaz traces [Chandra et al., 2002], l'étude des variations inter-annuelles de ces gaz permet de suivre la variabilité de l'ENSO [Chandra et al., 2009, Inness et al., 2015]. Afin de pouvoir suivre la variabilité de l'ENSO, [Ziemke et al., 2010] ont identifié deux régions spécifiques au niveau de l'océan Pacifique tropical, toutes deux situées entre 15° S et 15° N. L'une est située sur l'Indonésie et l'océan Indien (entre 70° E - 140° E), nommée par la suite IIO pour *Indonesia and Indian Ocean*, et l'autre région est située sur l'océan Pacifique (entre 110° W - 180° W), nommée POC pour *Pacific Ocean Central*.

Afin de s'assurer que les simulations sont exploitables pour cette étude, une première validation a été effectuée contre les sondes d'ozone pour la bande latitudinale 15° S et 15° N (section 6.5.1), dont le nombre de sondes est bien plus important que pour les régions POC et IIO. La validation des trois simulations est produite séparément pour la colonne d'ozone troposphérique (TCO) située entre 1000 hPa et 100 hPa, la troposphère libre (750 - 100 hPa) et la couche limite planétaire (1000 - 750 hPa) afin d'évaluer l'apport des données IASI dans ces trois couches atmosphériques. Une validation locale a ensuite été faite pour les régions POC et IIO.

Une fois les simulations validées, la variabilité temporelle et spatiale de la TCO durant la période 2008 - 2013, et particulièrement durant l'ENSO, est analysée (section 6.5.2). Le lien existant entre la température de surface de l'eau (SST, pour *Sea Surface Temperature*) et la colonne d'ozone durant les conditions normales de la cellule de Walker ainsi que durant El Niño et La Niña est observé avec une analyse latitudes-longitudes de la SST et des TCO (section 6.5.2). Les données SST proviennent de l'instrument MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectrometer) à

bord des satellites AQUA alors que les données TCO proviennent des données OMI-MLS. Plusieurs études ont souligné le lien existant entre les anomalies de SST et les dynamiques atmosphériques de l'ENSO [Barnston et al., 1997, Clarke, 2008, Wang et al., 2014]. Les variations des concentrations de TCO résultent d'une combinaison entre les feux de biomasse rejetant les précurseurs d'ozone [Chandra et al., 2002] et le déplacement de la branche convective de la cellule de Walker associé aux changements de SST causés par l'ENSO [Chandra et al., 2009, Sudo and Takahashi, 2001a]. Les remontées d'eaux froides dans la région POC engendrent de la subsidence atmosphérique augmentant la TCO et l'accumulation d'eaux chaudes dans la région IIO engendrent de la convergence atmosphérique diminuant la TCO. Ce lien entre les SST et les TCO est expliqué dans le chapitre 1. Des changements dans la SST sont observés autour des hivers 2010 et 2011, causés par l'ENSO. Une propagation des eaux chaudes de la région IIO vers la région POC à partir de juillet 2009 est liée à El Niño, coïncidant avec une propagation vers l'Est de faible TCO. Le renforcement de la remontée des eaux froides durant La Niña dans la région POC et leur déplacement vers la région IIO, impliquent à partir de juillet 2010, une élévation ainsi qu'une propagation vers l'Ouest du maximum de TCO.

Dans le but d'estimer si la distribution d'ozone caractéristique de l'océan Pacifique tropical est identifiée avec IASIMLS-a durant l'ENSO, les anomalies latitude-longitude des TCO d'OMI-MLS, du modèle direct, de MLS-a et de IASIMLS-a ont été calculées (section 6.5.2). Les données troposphériques de IASI apportent d'importantes informations concernant la variabilité spatio-temporelle de l'ozone troposphérique sur l'océan Pacifique tropical.

La valeur ajoutée des données IASI dans l'analyse IASIMLS-a est également perçue en calculant l'Ozone ENSO Index (OEI, section 6.5.2). L'OEI, développé par [Ziemke et al., 2010] est calculé en soustrayant mensuellement la TCO de la région POC à la TCO de la région IIO. [Ziemke et al., 2010] applique de plus à ce calcul une désaisonnalisation pour enlever le signal annuel. Une moyenne de 3 mois est également faite pour être cohérente avec le calcul mensuel de l'indice Niño 3.4. L'indice Niño 3.4 est un des indices les plus connus, calculé à partir des anomalies de SST de l'Est du Pacifique tropical, pour suivre les événements de l'ENSO.

L'OEI est un important indicateur sur l'intensité de l'ENSO qui influence l'ozone troposphérique sur les régions IIO et POC [Ziemke et al., 2014]. De plus, l'OEI est considéré comme un outil diagnostique permettant d'évaluer la capacité des modèles à reproduire les changements à long terme de l'ozone troposphérique, liés aux oscillations de SST et de transport convectif [Ziemke et al., 2010]. L'OEI calculé à partir de la simulation IASIMLS-a, reproduit l'intensité et les oscillations de l'ozone dus à l'ENSO.

Finalement, grâce à l'assimilation de données, la distribution verticale de l'ozone est examinée sur la période 2008 - 2013 pour les trois simulations (section 6.5.2). L'étude sur la distribution verticale permet d'observer la contribution des données troposphériques de IASI dans l'analyse afin d'identifier les structures dynamiques de l'ozone troposphérique liées à la variabilité de l'ENSO.



## 6.2 Article - Multi-year assimilation of IASI and MLS ozone retrievals : variability of tropospheric ozone over the tropics in response to ENSO.

Hélène Peiro<sup>1</sup>, Emanuele Emili<sup>1</sup>, Daniel Cariolle<sup>1,2</sup>, Brice Barret<sup>3</sup>, Eric Le Flochmoen<sup>3</sup>.

<sup>1</sup>CECI, Université de Toulouse, Cerfacs, CNRS, Toulouse, France

<sup>2</sup>Météo-France, Toulouse, France

<sup>3</sup>Laboratoire d'Aérodynamique, Université de Toulouse, CNRS, UPS, Toulouse, France

### Abstract

The Infrared Atmospheric Sounder Instrument (IASI) allows global coverage with very high spatial resolution and its measurements are promising for long-term ozone monitoring. In this study, the Microwave Limb Sounder (MLS) and IASI are assimilated in a chemistry transport model to produce 6-hourly analyses of tropospheric ozone during six years (2008 - 2013). We have compared and evaluated the IASI-MLS analysis and the MLS analysis to assess the added value of IASI measurements.

The global chemical transport model MOCAGE (MODèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) has been used with a linear ozone chemistry scheme and meteorological forcing fields from ERA-Interim (ECMWF global reanalysis). An horizontal resolution of  $2^\circ \times 2^\circ$  and 60 sigma-hybrid vertical levels extending from the ground to the upper stratosphere have been used. MLS and IASI  $O_3$  retrievals have been assimilated with a 4D-VAR variational algorithm to constrain stratospheric and tropospheric ozone respectively. The ozone analyses are validated against ozonesoundings and Tropospheric Column Ozone (TCO) from the OMI-MLS residual method. In addition, an Ozone ENSO Index (OEI) is computed from the analysis to validate the TCO variability during the ENSO events.

We show that the assimilation of IASI reproduces correctly the variability of tropospheric ozone during the examined period. The variability deduced from the IASI-MLS analysis and the OMI-MLS measurements are similar for the whole period. IASI-MLS analysis can reproduce the extreme oscillation of tropospheric ozone caused by ENSO events over the tropical Pacific Ocean. However, a correction is required to reduce a constant bias present in the IASI-MLS analysis.

## 6.3 Introduction

Tropospheric ozone ( $O_3$ ) is the third most important greenhouse gas [Houghton et al., 2001]. It influences the atmospheric radiative forcing being one of main absorbers of infrared and ultraviolet radiation [Wang et al., 1980, Lacis et al., 1990]. It also has a strong effect on human health and vege-

tation. High levels of  $O_3$  concentrations increase pulmonary and chronic respiratory diseases, increasing human premature mortality [Guilbert, 2003, Bell et al., 2004, Ebi and McGregor, 2008]. High concentrations of  $O_3$  reduce photosynthesis and other important physiological functions of vegetation [Yendrek et al., 2015].

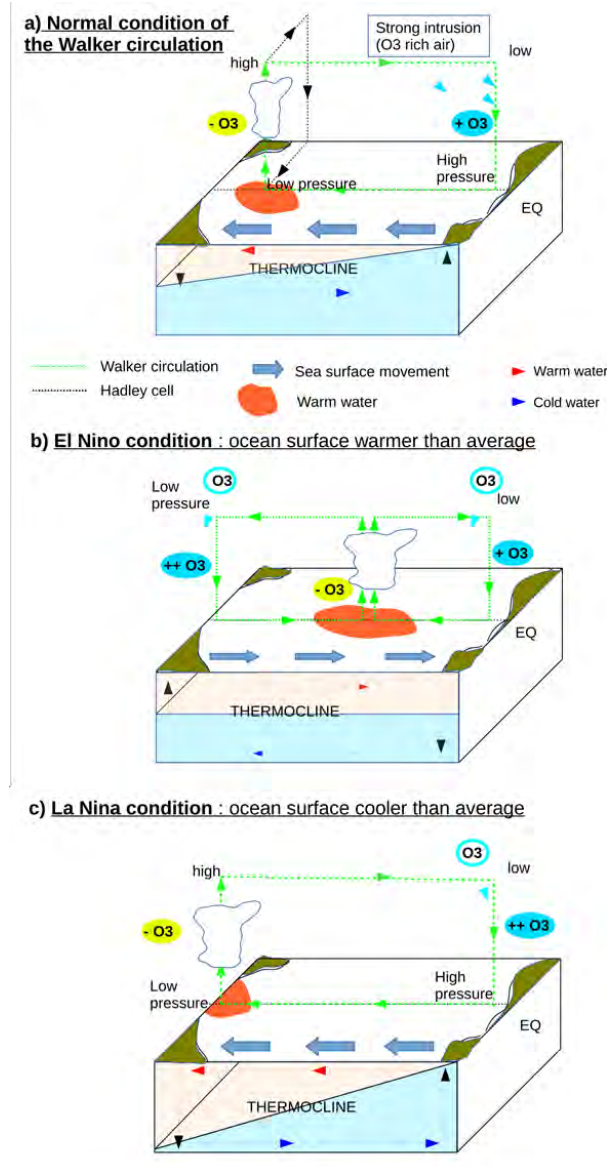


Figure 6.1: Schematic of the Walker Circulation over the Pacific ocean. a) During normal conditions : trade winds induce subsidence along South America with intrusion of  $O_3$  rich air. TCO is elevated. In addition, along Indonesia, warmer waters generate convergence that results in low  $O_3$  concentrations. TCO is weakened, b) During El Niño event : easterly trade winds are weakened. Therefore, convergence areas are located near the coast of the South America while subsidence zones are located in the Indonesia. Low TCO is located over the Pacific ocean while high TCO is located over Indonesia, and c) During La Niña event : during exceptionally strong trade winds the convergence over the Indonesia is stronger. TCO has the lowest concentration. Subsidence over the South America bring air masses with high  $O_3$  concentration resulting in higher TCO than average values.

Due to its relatively long life-time (~2 weeks in the troposphere), the global variability of tropospheric ozone is the combination of the complex interactions between anthropogenic emissions, chemical production and destruction, long-range transport and stratosphere-troposphere exchanges. A global increase

of tropospheric ozone has been documented during the last 30 years [Cooper et al., 2014], the cause of which is not yet well understood [Fowler et al., 2008]. To determine the origin of this trend it is important to evaluate the relative contributions between natural variability and anthropogenic forcing.

Among the natural forcings, the El Niño Southern Oscillation (ENSO) is an atmospheric phenomenon with a large-scale circulation pattern that influences the  $O_3$  distribution [Chandra et al., 1998, Zeng and Pyle, 2005] with a periodicity of about 2 - 7 years. ENSO refers to two events in the tropical Eastern Pacific: El Niño (anomalously warm ocean temperatures) and La Niña (anomalously cold ocean temperatures). ENSO is the dominant source of the tropical Pacific variability for the atmosphere and the ocean [Trenberth, 1997, Philander S. G., 1989]. During ENSO changes in sea-surface temperatures (SST) in the Pacific Ocean have great influence on the normal atmospheric circulation, displacing the location of convection and its intensity [Quan et al., 2004]. These changes in circulation impact the temperature and moisture fields across the tropical Pacific, influencing the chemical composition of the troposphere ([Ziemke, J. R. and Chandra, 2003], [Randel and Thompson, 2011], figure 6.1).

Convection during ENSO affects tropical tropospheric  $O_3$  in two ways. First, convection impacts the vertical mixing of  $O_3$  itself. Convection lifts lower tropospheric air masses with a low ozone concentration, where  $O_3$  lifetime is shorter, to upper-troposphere where  $O_3$  lifetime is longer [Doherty et al., 2005]. Overall increased convection leads to a decrease of the tropospheric ozone column (figure 6.1a). During El Niño, TCO over Indonesia is higher than average. A

remarkable change in the tropospheric  $O_3$  concentration due to El Niño has occurred in the Western part of Pacific during 1997 - 1998, with an increase in the TCO of +20 DU to +25 DU [Chandra et al., 2002]. Second, convection affects vertical mixing and vertical distribution of  $O_3$  precursors [Stevenson et al., 2005]. El Niño event coincides with dry conditions generating large-scale biomass burning in Indonesia [Chandra et al., 2002]. Atmospheric particulates and  $O_3$  precursors, increase in Indonesia (figure 6.1b). During La Niña event, dry conditions are located in the South America causing an increase of TCO in the Eastern Pacific Ocean (figure 6.1c).

Previous studies have characterized the variations of the tropical tropospheric  $O_3$  linked to ENSO [Ziemke et al., 2015]. To characterize the ENSO amplitude several ENSO indices have been proposed based on ENSO footprints on the pressure field or the outgoing longwave radiation [Ardanuy and Lee Kyle, 1985, Trenberth, 1997]. [Ziemke et al., 2010] developed such an index for Ozone, the Ozone ENSO Index (OEI), to better characterize the effect of the oscillation on the  $O_3$  distribution but also to use it as a diagnostic tool for tropospheric chemistry models.

A detailed analysis of the effects of convection on tropospheric  $O_3$  has been inhibited so far by the paucity of observations [Solomon et al., 2005, Lee et al., 2010]. The restricted number of ozonesondes observations limits the analysis that can be made of the links between  $O_3$  and ENSO [Thompson et al., 2003].

Satellites observations can give more information on the  $O_3$  variability and their global coverage gives better insight on the processes involved in ENSO [Ziemke et al., 2010]. To derive tropo-

spheric  $O_3$  several studies have combined ozone measurements from Ozone Monitoring Instrument (OMI) that measures the total ozone columns, and the Microwave Limb Sounder (MLS) that provides vertical ozone profiles in the upper troposphere and stratosphere. [Ziemke et al., 2006] subtracted the stratospheric column  $O_3$  (of MLS) from the total column  $O_3$  (of OMI) to obtain the tropospheric column  $O_3$  (named hereafter OMI-MLS). They show a large impact of ENSO on tropospheric  $O_3$  in the tropics by using the OMI-MLS dataset [Ziemke et al., 2015]. The  $O_3$  sensitivity to ENSO was also studied with the Tropospheric Emission Spectrometer (TES) observations [Neu et al., 2014]. They studied, during El Niño, the long range transport of Asian pollution due to the Northern Hemisphere subtropical jet. MLS and TES data were also compared with a chemical-climate model to study how ENSO can influence the  $O_3$  distribution [Oman et al., 2013]. Therefore, the link between  $O_3$  and ENSO becomes a key element of the chemistry-climate interactions.

The combination of OMI and MLS measurements allows interesting insights on the links between tropospheric  $O_3$  and ENSO, but has limitations because the tropospheric partial  $O_3$  columns are obtained as a difference between two large quantities, the total column and the stratospheric column. Hence, possible bias and errors in MLS and OMI determinations can be amplified when the partial tropospheric column are evaluated. The objective of the present study is to obtain direct evaluations of tropospheric ozone using assimilation of ozone profiles from MLS and from IASI.

The IASI instrument, launched on board Metop-A in 2006, was designed for numerical weather predictions and atmo-

spheric composition observations [Clerbaux et al., 2009]. IASI allows a daily global coverage at very high spatial resolution (12 km for nadir observations). Thanks to its stretched spatial coverage, the day and night retrieval coverage, IASI provides an important added value with respect to other satellites like TES or OMI [Herbin et al., 2009, Pittman et al., 2009, Oetjen et al., 2016]. IASI mission is meant to last for several decades (MetOP) whereas the instruments OMI, MLS and TES are scientific missions with limited lifespan. Tropospheric  $O_3$  from IASI has been already studied and validated. IASI ozone data was found particularly well adapted to study  $O_3$  variations in the upper troposphere [Dufour et al., 2012, Tocquer et al., 2015, Barret et al., 2016]. Since we have already about 10 years of data the IASI mission provides a valuable dataset to study the  $O_3$  variability and trends [Tohir et al., 2015, Wespes et al., 2016], both in the troposphere and the stratosphere [Wespes et al., 2009, Wespes et al., 2012, Dufour et al., 2010, Barret et al., 2011, Scannell et al., 2012, Safieddine et al., 2013].

By assimilating IASI data within the MOCAGE model [Teyssède et al., 2007], we expect to obtain  $O_3$  distributions consistent with OMI-MLS observations and to have additional information on the vertical  $O_3$  estimations in the troposphere. We use the MOCAGE CTM to assimilate tropospheric ozone profiles from IASI and stratospheric profiles from MLS with a 4DVAR algorithm. To compute ozone tendencies MOCAGE uses the latest version of the linear ozone chemistry parametrization of [Cariolle and Teyssède, 2007].

The influence of ENSO on tropical tropospheric  $O_3$  have been simulated by CTM's or by global chemistry-climate

models [Sudo and Takahashi, 2001a, Zeng and Pyle, 2005, Doherty et al., 2006, Oman et al., 2011]. Fewer studies used data assimilation to study the distribution and inter-annual variability of tropospheric ozone in the Pacific [Liu et al., 2017, Olsen et al., 2016]. Furthermore, the assimilation of IASI data for a long time period has never been considered yet. The 6 years reanalysis (2008 - 2013) of tropospheric  $O_3$  that we have computed in the present study appears to be one of the few datasets suitable to perform analyses of the ozone variability in the tropics from short-term to inter-annual time scales.

The layout of this paper is as follows. In Sect. 2 we describe the observations used for assimilation and model validation, and the settings used by the MOCAGE model and the assimilation suite. In Sect. 3 we discuss the results obtained assimilating IASI and MLS data with emphasis on the impact of ENSO on tropospheric  $O_3$ . We derive an Ozone ENSO index and compare its evolution to previous studies. The final section summarizes the results.

## 6.4 Methodology

### 6.4.1 Assimilated observations

#### IASI/MetOp-A measurements

IASI is one of the instruments on board the series of polar-orbiting satellites MetOp (Meteorological Operational) operated by the European organization for the exploitation of Meteorological Satellites (EUMETSAT). MetOp-A platform was the first one launched on 19 October 2006 and has already provided data for about 10 years. Due to its inclination to the equatorial plane and its altitude

(817 km), MetOp-A crosses the equatorial plane at 09:30 and 21:30 local time.

IASI is a nadir viewing instrument based on a Fourier Transform Spectrometer. Several detectors fully cover the thermal infrared spectral range between  $645\text{ cm}^{-1}$  and  $2760\text{ cm}^{-1}$  ( $15.5\text{ }\mu\text{m}$  to  $3.62\text{ }\mu\text{m}$ ). IASI provides spectra with a high radiometric quality at a resolution of  $0.5\text{ cm}^{-1}$  (after apodization). IASI measurements are taken along and across-track over a swath width of 2200 km with an horizontal resolution of 12 km. Therefore, IASI provides global coverage twice a day.

The high spectral resolution of IASI allows to retrieve vertical profiles of a number of gases affecting the climate system and the atmospheric pollution [Clerbaux et al., 2009, Coheur et al., 2009]. Previous studies have used vertical information from IASI Level 2 products to study  $O_3$  in the troposphere, in the Upper Troposphere/Lower Stratosphere (UTLS) and in the stratosphere [Dufour et al., 2010, Barret et al., 2011, Wespes et al., 2012, Tocquer et al., 2015, Barret et al., 2016].

A radiative transfer code and a retrieval software are used to retrieve  $O_3$  profiles from IASI radiances. We use  $O_3$  retrievals performed with the Software for Fast Retrieval of IASI Data [Barret et al., 2011] developed at Laboratoire of Aerology. SOFRID is based on the RTTOV (Radiative Transfer for TOVS, [Saunders et al., 1999b, Saunders et al., 1999a]) fast radiative transfer model coupled to the 1DVar algorithm developed at UKMO [Pavelin et al., 2008].

SOFRID retrieves the  $O_3$  profiles on 43 levels from 1000 to 0.1 hPa using a single a priori profile and covariance matrix based on one year of in-situ observations (see [Barret et al., 2011] for de-

tails). Validation of six months of tropospheric O<sub>3</sub> columns from IASI-SOFRID against ozonesondes and airborne data have shown biases of about 5 % and Relative Standard Deviation (RSD) of about 15 % in the tropics. In their validation study of three IASI O<sub>3</sub> products over one year, [Dufour et al., 2012] also found biases of 3.8 % and RSD of 9.5 % for IASI-SOFRID tropospheric O<sub>3</sub> relative to ozonesonde data in the tropics.

### MLS measurements

The MLS instrument flies on board the Aura satellite in a polar orbit since July 2004. The Aura spacecraft has an equatorial crossing time of 1:45 pm (ascending node) with approximately 15 orbits per day on average. MLS measures thermal emissions at the atmospheric limb and provides vertical profiles of several atmospheric parameters [Waters et al., 2006]. MLS allows the retrieval of about 3500 profiles per day with a nearly global spatial coverage between 82° S and 82° N. Each profile is spaced by about 165 km along the orbit track. The recommended useful pressure range [Livesey et al., 2011] for the MLS measurements of the versions v3 and v4 is from 261 hPa to 0.02 hPa, with a vertical resolution between 2.5 km and 6 km.

We have used for this study the version 4.2 of the MLS ozone product (<http://mls.jpl.nasa.gov/>; [Schwartz et al., 2015]). Notable improvements of the v4.2, compared to the earlier versions v3.3/v3.4, show a reduction in the severity and frequency of cloud impacts on ozone determination. For more information, users of the MLS/Aura L2 v4.2 should refer to the EOS MLS Level 2 Version 4 Quality Document by [Livesey et al., 2016].

The MLS ozone profiles are accurate

in the UTLS, with a precision of about 5 % in the stratosphere but with biases that increase in the upper troposphere and can be as high as 20 % at the 215 hPa level [Froidevaux et al., 2008]. To avoid the introduction of biases at this level in our analyses we have taken the MLS ozone data only between 12.12 hPa to 177.83 hPa.

### 6.4.2 Validation observations

#### The OMI-MLS residual method and Ozone ENSO index

The OMI instrument, is one among a total of four instruments on board Aura satellite. It is a nadir viewing imaging spectrometer that measures the solar radiation reflected by Earth's atmosphere and surface [Levelt et al., 2006]. It makes spectral measurements in the ultraviolet (270 - 314 nm; 306 - 380 nm) and visible 350 - 500 nm wavelength regions at 0.5 nm resolution. OMI provides measurements with a daily global coverage and a very high horizontal spatial resolution of 13 km x 24 km at nadir [Dobber et al., 2006]. Retrievals errors of the OMI data vary from 6 % to 35 % in the troposphere [Liu et al., 2010]. Total column ozone from OMI have been derived using the TOMS version 8 algorithm [Ziemke et al., 2006].

To derive the TCO with the OMI-MLS residual method, [Ziemke et al., 2006] subtracted the stratospheric ozone columns retrieved with MLS from the OMI total column. They selected OMI pixels with near clear-sky conditions (radiative cloud fraction < 30 %) whereas stratospheric MLS data was spatially interpolated each day on a coarser regular grid. The tropopause height used for the TCO OMI-MLS determination comes

from the National Centers for Environmental Prediction (NCEP) using the  $2 \text{ K.km}^{-1}$  lapse rate tropopause definition [Craig, 1965] of the World Meteorological Organization (WMO). We recovered OMI-MLS data on the NASA GODDARD website for tropospheric ozone ([http://acd-ext.gsfc.nasa.gov/Data\\_serv/ices/cloud\\_slice/](http://acd-ext.gsfc.nasa.gov/Data_serv/ices/cloud_slice/)).

All available daily data have been averaged to compute monthly means with a latitude-longitude resolution of  $1^\circ \times 1.25^\circ$ .

There is not one single universal ENSO index able to reproduce oceanic and atmospheric physical conditions over the tropical Pacific [Trenberth, 1997]. Many ENSO indexes have been developed using for instance sea-surface pressure, SST, and precipitation [Trenberth, 1997, Curtis and Adler, 2000]. The one commonly used is the NOAA Niño 3.4 index derived from the SST anomalies. Based on several satellite instruments spanning over 30 years to investigate ENSO's impact on tropical TCO [Ziemke et al., 2010] produced the monthly OEI.

Stratospheric column ozone in tropical Pacific has very small longitudinal variations of only a few Dobson Units. This has been shown in the previous study from SAGE, UARS HALOE, UARS MLS and AURA MLS stratospheric  $\text{O}_3$  satellite measurements [Ziemke et al., 1998, Ziemke et al., 2010]. Because of this characteristic, the zonal variation of the TCO in tropical Pacific is essentially identical with the east-west variation of total column ozone. Thus to derive the OEI only TCO can be used.

The OEI is obtained by subtracting the TCO in the region named *Pacific Ocean Center* (POC,  $15^\circ \text{ S} - 15^\circ \text{ N}$ ,  $110^\circ$

$\text{W} - 180^\circ \text{ W}$ ) from the TCO in the region *Indonesia with Indian Ocean* (IIO,  $15^\circ \text{ S} - 15^\circ \text{ N}$ ,  $70^\circ \text{ E} - 140^\circ \text{ E}$ ) each month. To compute the TCO, the altitude of the tropopause must be known. The tropopause heights used by Ziemke come from the NCEP. The tropopause is defined as the lowest level, with respect to altitude, at which the temperature lapse rate decreases to  $2^\circ \text{ C.km}^{-1}$  or less.

We adopted this tropopause computation in the OEI of our analyses. Tropopause pressures, used to compute Ozone Index with both the assimilation of IASI-MLS and MLS only data, are comprised between 80 hPa at low latitudes and 500 hPa at high latitudes.

### Ozonesondes

Ozonesondes are launched in many locations over the world on a weekly basis, measuring vertical profiles of  $\text{O}_3$  concentration with a high vertical resolution of 150 - 200 m, from the ground to approximately 10 hPa. Data are collected by the World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Center (WOUDC, <http://www.woudc.org>). During the six years considered in this study (2008 to 2013), only 270 ozonesoundings are available for the Pacific area between  $15^\circ \text{ S} - 15^\circ \text{ N}$  and  $70^\circ \text{ E} - 110^\circ \text{ W}$  (Figure 6.2). We divide this area in two regions: IIO and POC, which are represented by the two blue rectangles in Figure 6.2.

The WOUDC ozonesondes measurements used for the validation are considered as a reference. Despite their sparse geographical distribution several studies have used WOUDC database to validate global models and satellite retrievals [Geer et al., 2006, Massart et al., 2009, Dufour et al., 2012].

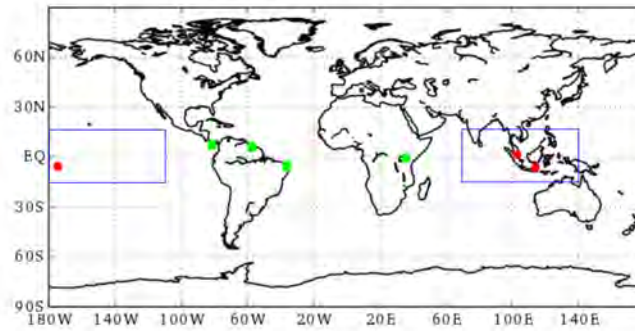


Figure 6.2: Map of WOUDC ozonesondes localization between  $15^{\circ}$  S and  $15^{\circ}$  N. The red circles marks ozonesondes stations between  $70^{\circ}$  E to  $110^{\circ}$  W. Green squares are ozonesondes stations elsewhere in the tropical band used hereafter. The two blue square define the IIO region ( $15^{\circ}$  S -  $15^{\circ}$  N and  $70^{\circ}$  E -  $140^{\circ}$  E) and the POC region ( $15^{\circ}$  S -  $15^{\circ}$  N and  $180^{\circ}$  W -  $110^{\circ}$  W) referred in this study.

### 6.4.3 Analyses

#### Chemical transport model

MOCAGE is a three-dimensional CTM based on a semi-Lagrangian advection scheme [Williamson and Rasch, 1989] developed for both tropospheric and stratospheric applications. Multiple nested domains with different horizontal resolutions can be used within MOCAGE, as well as chemical and physical parameterizations of increasing complexity. The different configurations of MOCAGE have been validated against *in-situ*, satellite, and ground-based measurements in several studies [Josse et al., 2004, Teyssède et al., 2007, Boussez et al., 2007, Honoré et al., 2008, Sič et al., 2015].

For this study, a global horizontal resolution of  $2^{\circ} \times 2^{\circ}$  has been used with 60 sigma hybrid vertical levels from the surface up to 0.1 hPa. The vertical resolution goes from about 40 m in the boundary layer, to about 500 m in the free troposphere and to approximately 800 m in the upper troposphere and lower stratosphere. The model uses winds, temperature and ground pressure from the European Center for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) ERA-Interim re-

analysis [Berrisford et al., 2011].

For the chemical scheme we use the simplified ozone chemistry scheme developed by [Cariolle and Teyssède, 2007], based on the linearization of the destruction and production rates of ozone. [Emili et al., 2014] have shown that with this simplified chemical scheme it is possible to obtain  $O_3$  analyses from IASI data of comparable quality to those obtained using more complex chemical schemes. The use of this simplified scheme reduces numerical costs, which is highly beneficial for the production of long chemical re-analyses such as the ones discussed in this study.

#### Assimilation algorithm

The chemical data assimilation system for MOCAGE is developed at CERFACS and has already been used for several applications at both regional and global scales [El Amraoui et al., 2010, Sič et al., 2016]. The MOCAGE assimilation system was part of the first international exercise of satellite ozone assimilation [Geer et al., 2006] and it currently provides operational air quality analyses for the european project CAMS [Marécal et al.,



2015].

The assimilation configuration used for this study is based on the 4D-Var (4-Dimensional-Variational) algorithm. Compared to the 3D-Var algorithm, the 4D-Var allows a better exploitation of satellite observations with large spatial and temporal fingerprint [Massart et al., 2010]. The cost function is minimized using the limited-memory BFGS (Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno) method [Liu and Nocedal, 1989] and the 3D background error covariance matrix (B) is modeled through a diffusion equation [Weaver and Courtier, 2001].

IASI partial  $O_3$  columns (1000 - 345 hPa) and MLS profiles have been assimilated in the troposphere and in the stratosphere respectively to constrain the ozone concentration along the full atmospheric column. Before the assimilation, IASI data have been averaged to obtain  $2^\circ$  by  $2^\circ$  pixels to be in accordance with the model MOCAGE.

The retrieval equation based on the averaging kernels (AK) and on the a priori profile in the troposphere has been applied to the profiles from the model to account for the limited sensitivity of IASI retrievals in the troposphere (see [Barret et al., 2016]). The description of the linear retrieval equation can be found in [Barret et al., 2011].

[Emili et al., 2014] found global biases of 10 % in the troposphere assimilating IASI-SOFRID product in MOCAGE. When they removed 10 % of the values in the IASI observations, the biases in the analyses were significantly reduced. The same correction has been applied in this study.

Most of the parameters of the assimilation algorithm used to compute the re-analyses in this study are based on the study of [Emili et al., 2014]. The back-

ground and observation errors are defined as follows.

We specify the background error variances as a percentage of the modeled ozone profile equal to 15 % in the troposphere and 5 % in the stratosphere. These values were established through a global validation of ozone forecasts against ozonesondes. We use an horizontal correlation length defined by meridional and zonal length scales. The meridional length scale is fixed to a constant value of 300 km and the zonal length scale varies from 500 km at the equator to 100 km at the poles. Further tests led us to deactivate the vertical error correlation, compared to the value of one grid point used in the previous study [Emili et al., 2014]. Ozonesondes validation has shown a 20 % bias decrease close to the tropopause when deactivating the vertical correlation, the scores remaining the same elsewhere. The reason for such improvement is due to the relatively coarse vertical resolution of the model compared to the magnitude of the ozone gradient at the tropopause. When a non-zero error correlation is used, large assimilation increments due to lowermost MLS observations can spread into the upper troposphere and degrade the ozone concentration.

For IASI data we set the variance of the observation error equal to 15 % of the measured ozone columns. The error covariance matrix of the retrieval is prescribed from retrieval product of MLS measurements.

## 6.5 Results

We have performed three ozone simulations covering the period 2008 to 2013. The first simulation, called Direct Model (DM), has been produced running the MOCAGE CTM without data assimila-

tion. The model is initialized with a climatology on 1st November 2007 to allow for a spin-up period of two months. The second simulation, named MLS-a, started in January 2008 with the assimilation of MLS profiles for the whole period. Finally, the third simulation (IASIMLS-a) was produced with the assimilation of the IASI tropospheric O<sub>3</sub> columns and the MLS stratospheric O<sub>3</sub> profiles. For the three simulations the outputs are recorded every six hours.

The main results are outlined as follows. Section 6.5.1 contains the validation of the simulations against ozonesondes. A first validation (section 6.5.1) has been done considering all the measurements available in the latitude band between 15° S - 15° N providing a statistically significant validation in the tropical region. The following section 6.2 limits the comparison with O<sub>3</sub> soundings over the region directly influenced by ENSO events.

In section 6.5.2 we analyze the temporal and spatial variability of the TCO during the period 2008 - 2013. The link between sea surface temperature and ozone variability is studied with the OMI-MLS estimations (see section 6.4.2). The objective is to evaluate how the modelled ozone distributions reproduce ozone variability over the Pacific ocean during normal condition of the Walker cell and during ENSO events. In section 6.2, we compare the Ozone ENSO Index (OEI), computed using the previous datasets among each other and to the Niño 3.4 index, to demonstrate the added value of IASI tropospheric assimilation for long term ozone monitoring.

Finally, in section 6.2 the vertical distributions of ozone is examined over two regions (one over the Eastern Asia and

Indonesia and the second one over the Pacific Ocean) to highlight the footprint of ENSO on the three model simulations.

### 6.5.1 Validation with the ozonesoundings

#### The equatorial latitudes

O<sub>3</sub> data have been first treated as follows: i) The modelled fields have been collocated with the soundings in space and time, ii) The obtained values have been averaged on a two-months basis, in order to take into account a larger number of soundings for statistical evaluations.

Figure 6.3 shows the comparison between the partial ozone column of the three simulations and the ozonesondes data in the tropical band (15° S - 15° N). Partial ozone columns (in DU) and relative differences (in %) are plotted separately for the TCO (1000 - 100 hPa), the boundary layer (1000 - 750 hPa) and the free troposphere (750 - 100 hPa).

The TCO from ozonesondes (figure 6.3a) has maxima in summer/fall and minima in winter. The observed seasonal variation is a consequence of the biomass burning, which provides precursors for ozone formation in summer/fall. The emission of gases by biomass burning, such as carbon monoxide and carbonaceous aerosols, intensifies during the dry season (June - July and August - October) over both South America and Southern Africa [Andreae et al., 1998, Sinha et al., 2004].

The ozone columns produced by the DM and MLS-a simulations do not show the variability measured by the ozonesondes, their correlation coefficients with the sondes data are lower than 0.76 (figure 6.3a,b).

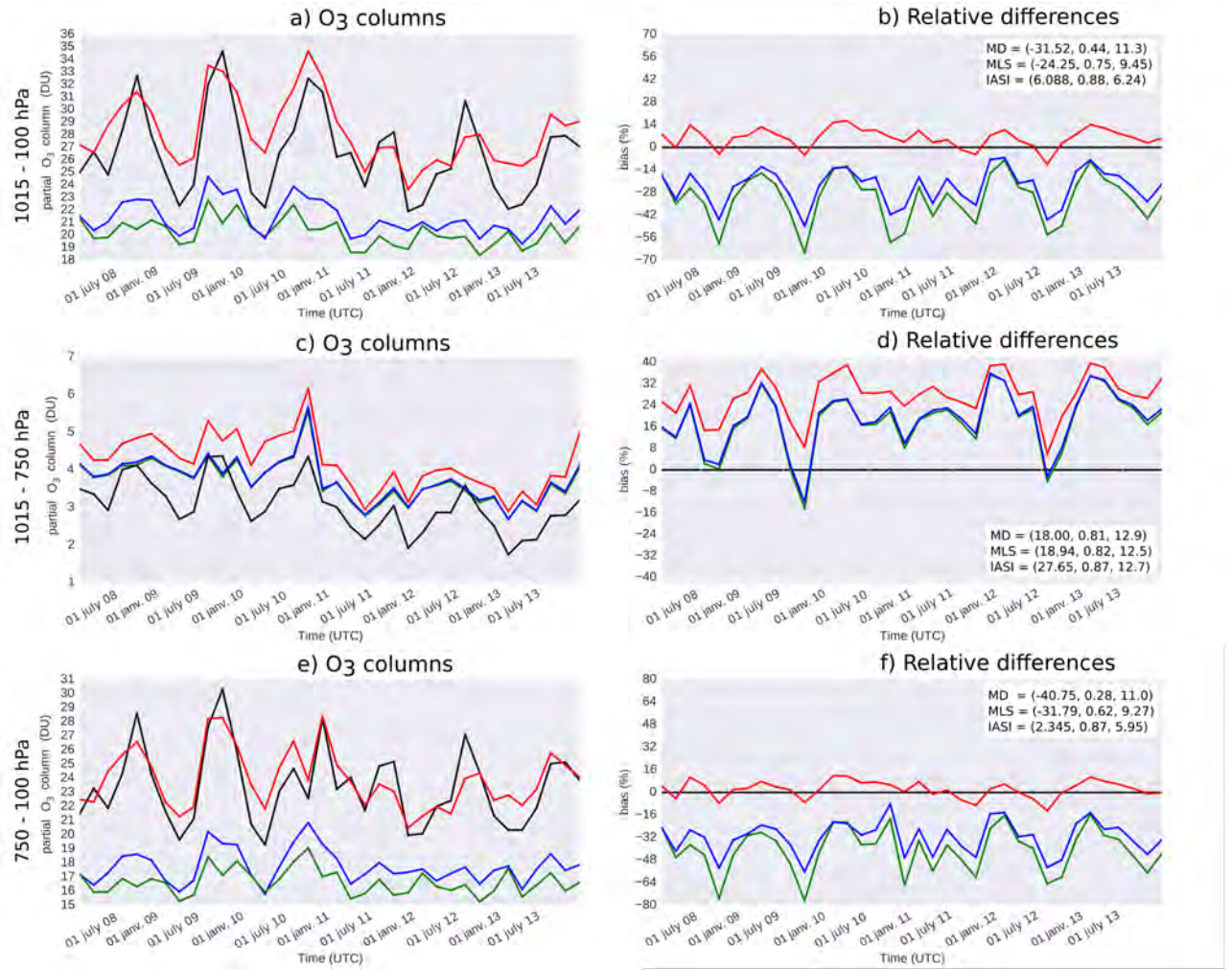


Figure 6.3: Time series of partial ozone column (left panels, in DU) from the IASIMLS-a (red curves), the MLS-a (blue curve), and the DM (green curve) plotted versus several stations measurements from WOUDC (black curves). Data are two-month averages over the area  $15^{\circ}$  S -  $15^{\circ}$  N and  $180^{\circ}$  W -  $180^{\circ}$  E for : a,b) the ozone column between 1015 hPa to 100 hPa, c,d) the boundary layer (1015 hPa - 750 hPa) and e,f) the free troposphere (750 hPa - 100 hPa). Biases in percentages are shown in right panels. Mean biases, correlation coefficients and standard deviations are also given (between brackets in the right panels).

The IASIMLS-a variability better matches the ozonesondes with a correlation coefficient of 0.88. In particular the IASIMLS-a simulation exhibits a year-to-year variability in very good agreement with the ozonesonde data. This is confirmed by the RSD of the differences between simulated and observed values: the RSD of IASIMLS-a is 6 % whereas it is about 10 % for MLS-a and MD.

The relative differences between sim-

ulated and observed values are presented in figure 6.3b. IASIMLS-a is less biased (6 %) than DM and MLS-a, and MLS-a has lower biases (24 %) than DM (32 %). Biases are less important with MLS-a, compared to DM, due to the assimilation of MLS stratospheric data. MLS-a improvement is due to the direct influence of the lowest assimilated level of MLS (170 hPa) which brings information on the  $O_3$  distribution in the UTLS re-

gion. Compared to IASIMLS-a the lower accuracy of DM comes from the use of the simplified ozone scheme, which does not account for the production of tropospheric ozone by biomass burning.

Figure 6.3c and 6.3d show that the IASIMLS-a tropospheric columns are biased high in the lower troposphere.

In this region, the RSD of the three simulations are very similar meaning similar variability compared to ozonesondes, even if IASIMLS-a matches slightly better the ozonesondes. However, IASIMLS-a is two times less accurate for the boundary layer O<sub>3</sub> column than for the TCO and its biases are higher than MD and MLS-a. Larger biases in the boundary layer than in the middle troposphere are due to the weaker sensitivity of the IASI instrument in this region.

Ozone concentration and biases of the IASIMLS-a simulation in the free troposphere (figure 6.3e and 6.3f) show much better results than the two others simulations. As it can be seen, the sensitivity of the IASI measurements is larger in the mid and upper troposphere. The RSD of IASIMLS-a is around 6 % instead of 11 % for DM and 9 % for MLS-a in the middle-upper troposphere (figure 6.3f). The added value of IASI data in the middle troposphere is particularly remarkable concerning bias, which is 2 % for IASIMLS-a instead of 41 % and 32 % for DM and MLS-a respectively.

Since the boundary layer (1000 - 750 hPa) corresponds approximately to 12 %

of the TCO (1000 - 100 hPa), the overestimation of the ozone column by the IASIMLS-a analysed in that layer has not a major impact on the TCO used for our study of the ENSO-O<sub>3</sub> correlation, which is the main objective of this study.

### From Eastern Africa to South America : focus on the ENSO

To study the ENSO we divide the region of interest (latitudes ranges 15° S - 15° N and longitudes ranges 70° E to 110° W) in two areas (see figure 6.2) : the first one, called IIO, has a longitude range between 70° E and 140° E while the second one, called POC, is located between 180° W and 110° W.

Three ozonesonde stations are available for both regions, two in the IIO region and one in the POC region (table 6.1).

Ozone measurements for each site are available over different time periods. The Malaysia site provides measurements only between January 2008 and December 2009, the Indonesia site from January 2008 to December 2012, and the Samoa site from January 2008 to December 2013.

Figure 6.4 shows the statistics of the IASIMLS-a O<sub>3</sub> simulation versus the three records from the ozonesoundings. Time series are computed in the same manner as the time series over the tropical band discussed in the previous section (section 6.5.1).

Name	Ozonesondes	Localization	Coordinates
Malaysia	443 ECC	Kuala Lumpur international airport, Malaysia	3° N - 101° E
Indonesia	437 ECC	Watukosek, Java Timur, Indonesia	8° S - 113° E
Samoa	191 ECC	Apia, Samoa	13° S - 172° W

Table 6.1: Ozonesonde stations at tropical latitudes from 70° E to 110° W.

From January 2008 to December 2009, TCO from the ozonesondes located in the IIO region (figure 6.4a and 6.4c) and those located in the POC region (figure 6.4e), has a seasonal variability with maxima in summer and minima in winter. This ozone seasonality is caused by the biomass combustion over the Western Pacific Ocean near New Guinea during the dry period [Kim and Newchurch, 1998]. Among the countries of Southern Asia, Indonesia is known as the third country for biomass burning emissions [Streets et al., 2003].

During the year 2010 and over the IIO region (figure 6.4c), the variability of the ozone concentrations changes. We see a peak of ozone during March 2010 over Indonesia (26 DU) whereas there is a minimum in Samoa (12 DU) (figure 6.4e). This ozone rise over the IIO region is linked with subsidence, generated by the El Niño event starting in January 2010 (see figure 6.1). El Niño intensifies subsidence and therefore dry conditions and biomass burning over Southern Asia [Matsueda et al., 2002, Chandra et al., 2002]. From September 2010 to August 2011, the TCO values decrease to an average of about 20 DU over Indonesia. This decrease in tropospheric ozone is due to the second phase of ENSO : La Niña. As we have already mentioned (figure 6.1), La Niña strengthens convection over the IIO causing a minimum in the TCO. Hence, there is a lower TCO over the Indonesia (around 20 DU) than over Samoa (around 28 DU). After summer 2011 the ENSO disappears and the TCO returns to normal seasonality.

IASIMLS-a reproduces quite well the variability measured by the ozonesondes during normal conditions of the Walker

circulation (2008 - 2009) and during the ENSO (2010 - 2011). In particular, IASIMLS-a agreement with the ozonesondes is better over the POC region (Samoa), where the correlation coefficient of 0.96, than over Indonesia and Malaysia where the coefficients are around 0.7.

However, the relative difference between IASIMLS-a and the ozonesondes is more important over the POC region (figure 6.4f) than over the IIO region (figures 6.4b, 6.4d), with an over-estimation of the ozone columns by about 17 % in Samoa. Mean biases are around 3 - 5 % for over Indonesia and Malaysia, showing that IASIMLS-a reproduces quite well the ozone variability during normal condition of the Walker circulation. Equally, IASIMLS-a reproduces the maximum over Indonesia and the minimum over Samoa during the 2010 El Niño event, as well as the TCO minima generated during La Niña over the IIO region. As already discussed, biases observed in the POC and IIO regions come from the decreased sensitivity of IASI in the boundary layer, and from the lack of adequate representation of the chemistry in the lower troposphere by the linear scheme used within MOCAGE.

The three simulations (IASIMLS-a, MD and MLS-a) have identical biases in the boundary layer compared to the ozonesoundings (figures not shown). Biases in the boundary layer are higher in the POC region (around 45 %) compared to the IIO region (around 20 %). However, in the POC region, the variability of the three simulations are remarkably well correlated with the ozonesondes with coefficient correlations higher than 0.85 (not shown).



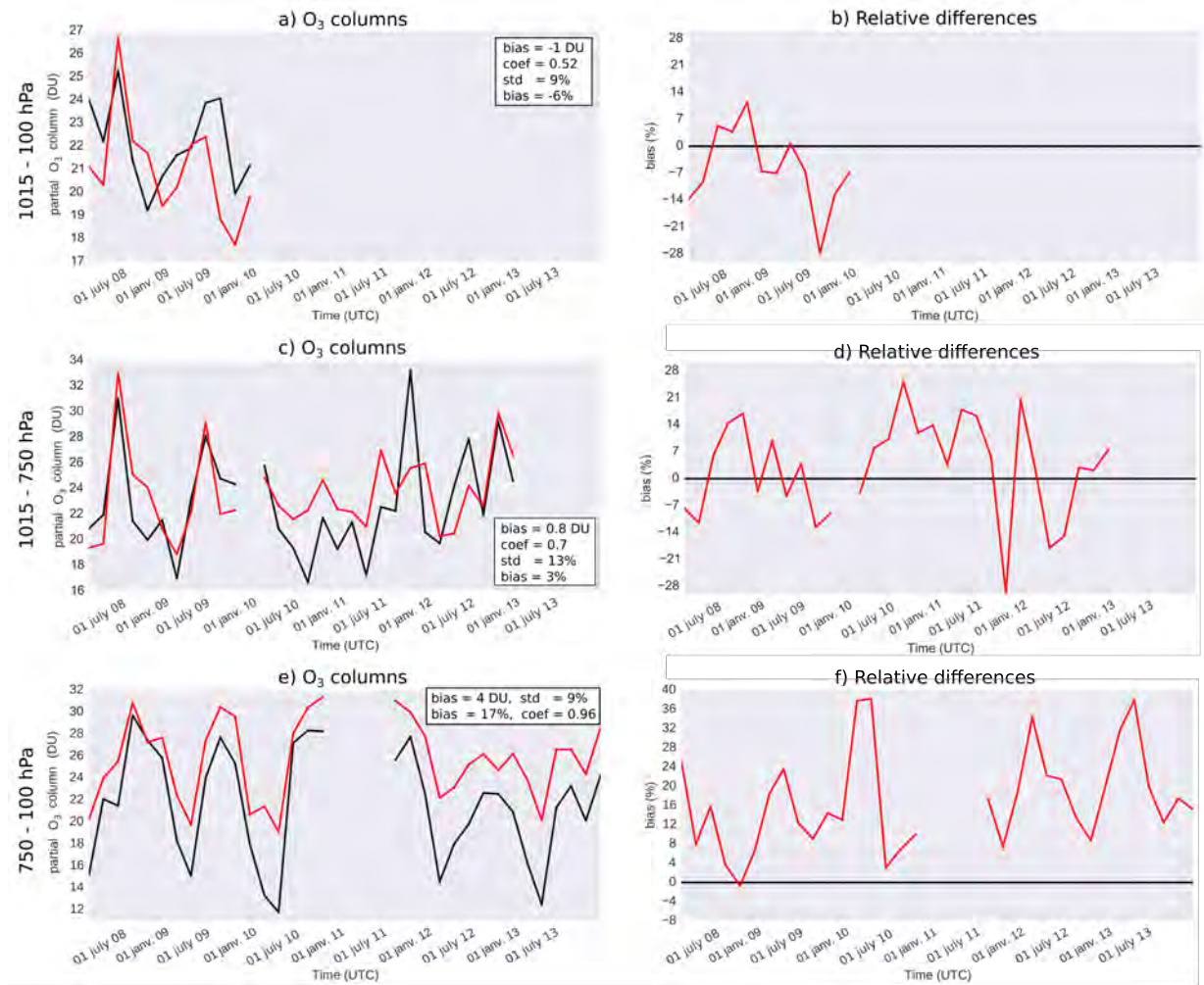


Figure 6.4: Comparisons between IASIMLS-a (in red) and ozonesondes (in black). Time series of the TCO concentration (in DU) are plotted on the left and relative differences are on the right for the sites of : a-b) Malaysia , c-d) Indonesia and e-f) Samoa.

To summarize, the IASIMLS-a simulation reproduces well the O<sub>3</sub> variability observed with the ozonesondes for the tropical latitudes and for both regions of POC and IIO. The seasonal oscillations of ozone, caused by the anthropogenic pollution and by ENSO, are reproduced by IASIMLS-a despite a slightly over-estimation of about 4 % in the IIO region and around 17 % in the POC region. The IASIMLS-a simulation is thus adequate to study ozone variability during ENSO events since biases are limited over the period under study.

### 6.5.2 Temporal and spatial variability of ozone during ENSO

#### Characterization of ENSO and footprints on SST and tropospheric ozone content

In this section we consider the link between Sea Surface Temperature (SST) and tropospheric ozone during ENSO events. Previous studies have highlighted the link between SST anomalies and ENSO dynamics [Philander S. G., 1989, Barnston et al., 1997, Wang et al.,

2014]. Colder SST in the POC region is associated with La Niña whereas El Niño has warmer SST than normal condition [Trenberth, 1997]. Variations in TCO concentrations are a combination of biomass burning rejecting large quantities of ozone precursors [Chandra et al., 2002] and eastward shift in the tropical convection of the Walker circulation associated with SST changes [Chandra et al., 1998, Sudo and Takahashi, 2001b].

The correlation between SST and TCO have already been characterized using OMI-MLS data, our objective is to see if similar correlations can be derived using the model simulations. To this end, we have taken SST data from the Giovanni-Interactive Visualization and Analysis - GES DISC: Goddard Earth Sciences, data and Information Services Centre (<https://disc.gsfc.nasa.gov>). SST data were measured by the instrument MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) aboard the Aqua satellites (NASA Earth Observing System platforms).

Figure 6.5 shows the time versus longitude Hovmöller diagram, averaged between  $15^{\circ}$  S and  $15^{\circ}$  N of the monthly mean SST and the OMI-MLS measurements. SST over the Pacific ocean has a characteristic geographic distribution (figure 6.5a), with warmest water in the IIO region ( $70^{\circ}$  E -  $140^{\circ}$  E) and coldest water in the POC region ( $180^{\circ}$  W -  $110^{\circ}$  W). The link between SST and TCO [Chandra et al., 1998, Chandra et al., 2009] is observed comparing the SST (figure 6.5a) with OMI-MLS measurements (figure 6.5b). The warmest water induce convective movements resulting in a TCO decrease and inversely for the coldest water. During El Niño (January 2010) the warmest SST shifts from IIO region to the POC region. These east-

ward shifts in SST coincide with eastward shifts of TCO from July 2008 to January 2010. During La Niña (occurring between September 2010 and January 2011) an opposite condition occurs with a strengthening of colder SST between  $80^{\circ}$  W and  $150^{\circ}$  W. In this region of colder SST (figure 6.5a), higher TCO (26 - 32 DU) is located between the coast of South America and  $140^{\circ}$  W (figure 6.5b). The eastward shift of SST occurring from January 2011 to December 2013, corresponds to the return of normal conditions over the Pacific ocean and impacts TCO with an eastward shift.

To compare the three model simulations with OMI-MLS we have computed anomalies of tropospheric ozone for the period 2008 - 2013 (figure 6.6). The anomalies are calculated by subtracting the time averaged TCO to each TCO determination and this difference has been divided by the mean TCO. TCO anomalies are expressed in percentage.

The variability of TCO, observed previously with OMI-MLS measurements in figure 6.5, is also clearly visible with the TCO anomaly (figure 6.6a). TCO with values 20 % lower than average are located in the IIO region. TCO with values 20 % higher than average are located close to the South America coasts. The El Niño event on January 2010 has a significant impact on TCO, with 20 % higher values in the IIO region and 10 % lower in the POC region. The La Niña event that follows shows opposite structure on the TCO with a maximum between  $110^{\circ}$  W to  $80^{\circ}$  W.

Part of the TCO variability in Eastern and Western Pacific ocean is reproduced with the DM simulation (figure 6.6b). TCO with values 10 % higher (resp. 10 % lower) than average are located in POC (resp. IIO) region.

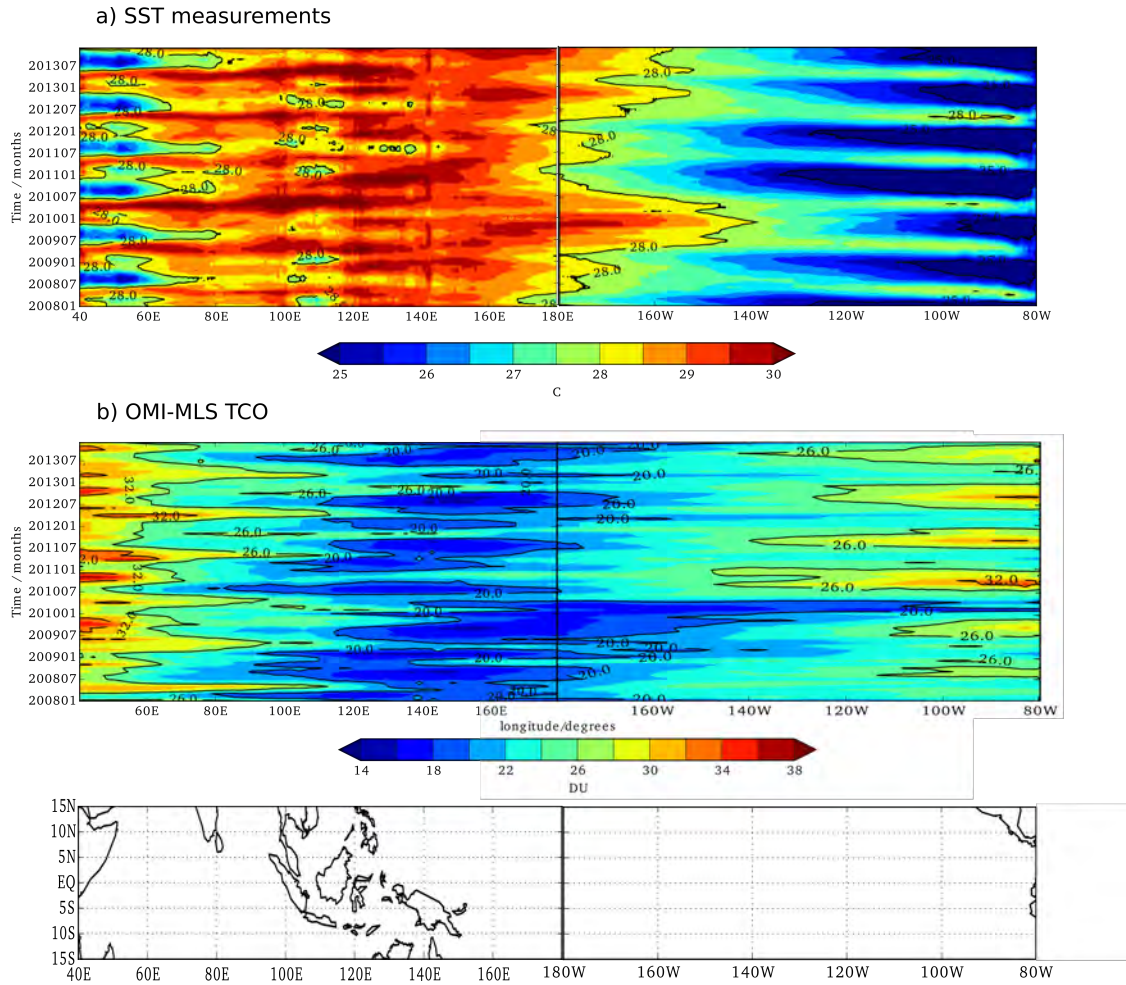


Figure 6.5: a) Time versus longitude Hovmöller diagram of the SST (in degrees Celsius). b) Same diagram from the OMI-MLS data. The data are monthly means from January 2008 to December 2013 and area-averaged between latitudes 15° S and 15° N. Also included over-side the maps corresponding of the Hovmöller diagram.

However the amplitude of the TCO anomalies from the DM simulation is much lower compared to OMI-MLS. Since the chemical scheme used in the MOCAGE model has no longitudinal forcing in the chemical tendencies, the TCO anomalies in the DM simulation are only due to changes in the equatorial circulation and the associated ozone transport. The ECMWF analyses capture the dynamics associated to ENSO and hence drive the variations of the TCO seen in the DM simulation.

The assimilation of MLS O<sub>3</sub> profiles

in the stratosphere does not change much the structures and percentages of anomalies of the TCO, the results of the MLS-a simulation (figure 6.6c) are similar to those of the DM. Eastern shift during El Niño and higher TCO in the POC region during La Niña are represented with both simulations but the TCO anomalies for both simulations are 10% lower than with those of OMI-MLS. Basically the ENSO impacts the troposphere and little information is brought by the assimilation of MLS data. Eastern shift during El Niño and higher TCO in the POC region dur-



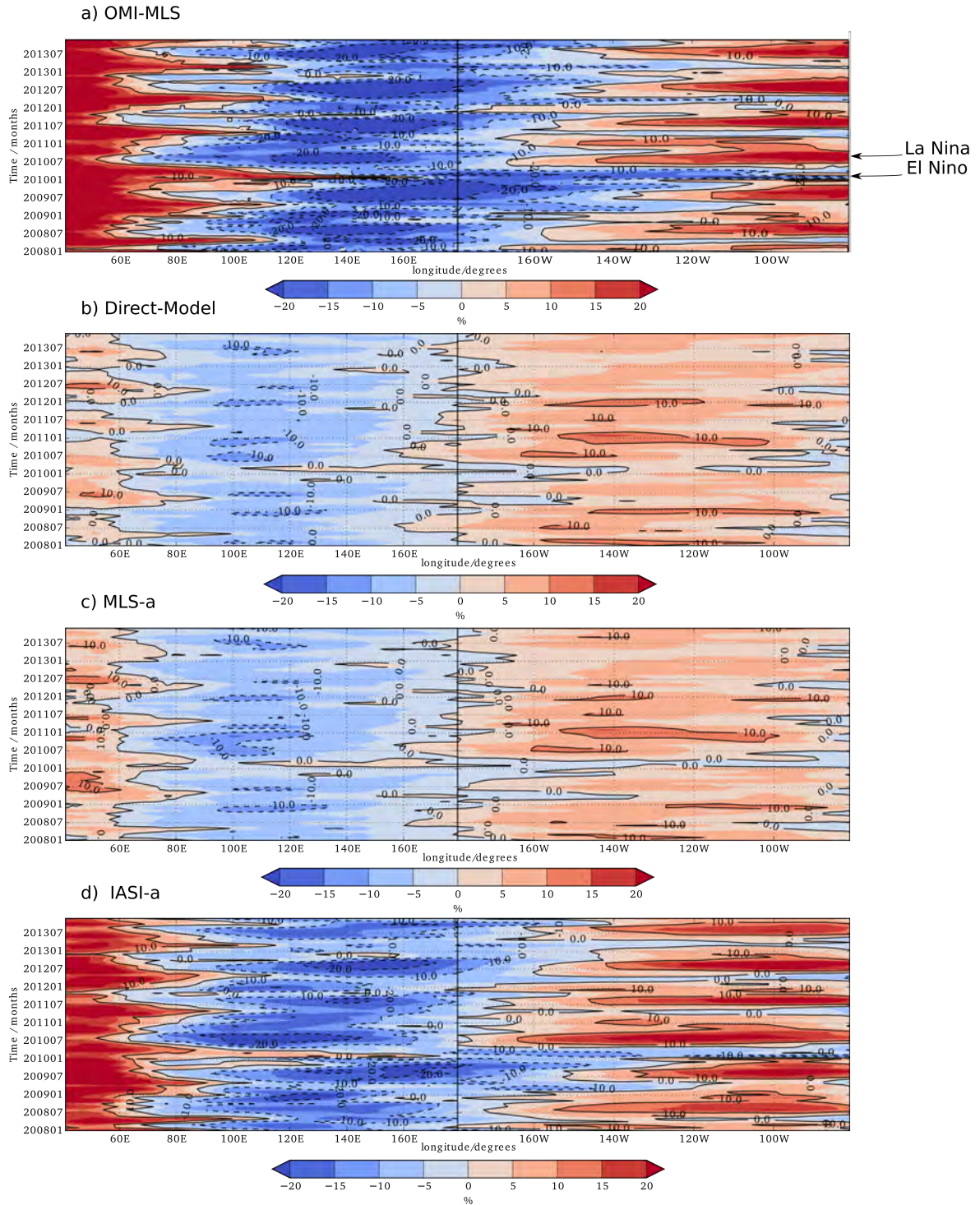


Figure 6.6: Longitude Hovmöller diagrams of TCO anomalies for a) OMI-MLS measurements, b) Direct-Model, c) MLS-a and d) IASIMLS-a between 2008 to 2013. Longitudes are identical to figure 6.5 : between  $40^{\circ}$  E and  $80^{\circ}$  W. Anomalies are expressed in percentage.

ing La Niña are slightly represented with both simulations.

Compared to DM and MLS-a the TCO variability is much better repro-

duced with IASIMLS-a (figure 6.6d). The amplitude of the TCO changes caused by El Niño and La Niña compare very well with the OMI-MLS observations. However, small differences appear between IASIMLS-a and OMI-MLS. Over the IIO region during El Niño the TCO anomaly is 10 % lower with IASIMLS-a than with OMI-MLS. In addition, the location of the TCO maximum during La Niña is located in the whole POC region with IASIMLS-a and in the Eastern part of the POC region with OMI-MLS.

Overall, the anomalies of the TCO reproduced by IASIMLS-a are in good agreement with those of OMI-MLS. The improvement compared to the DM and MLS-a simulations is very significant, thus demonstrating the usefulness of the IASI data for the ozone evaluation in the troposphere. Equally, the assimilation process is efficient to follow ozone variability and the resulting IASIMLS-a analyses appears to give a consistent data set for the study of the ozone variability. The advantage of IASIMLS-a over OMI-MLS is that the analyses are fully 4D with six hourly outputs and resolved information on the vertical dimension. The vertical distributions are studied in section 6.2.

### Comparison of the Ozone ENSO Index

The OEI is the TCO difference computed between the IIO region ( $70^{\circ}$  E -  $140^{\circ}$  E) and the POC region ( $180^{\circ}$  W -  $110^{\circ}$  W). The resulting time series are then deseasonalized. This deseasonalization is done to remove the signal of the annual cycle [Ziemke et al., 2010]. OEI is a strong indicator of the ENSO intensity influencing the tropospheric ozone over IIO and POC regions [Ziemke et al., 2010]. It

is considered as a basic diagnostic tool to evaluate the ability of the models to reproduce changes in tropospheric ozone [Ziemke et al., 2010, Ziemke et al., 2014] linked with ENSO.

Figure 6.7 shows the OEI during the period January 2008 to December 2013 computed from our model analyses and from the OMI-MLS data. OEI variations are related to ENSO, with maxima during El Niño and minima during La Niña events. In figure 6.7a we have plotted the OEI computed for the OMI-MLS measurements (noted OMI-MLS) and the Niño 3.4 index. The monthly Niño 3.4 is calculated from SST anomalies in the Pacific Ocean. Also included is the OEI of OMI-MLS smoothed using a 3-months running average, as computed by [Ziemke et al., 2010, Ziemke et al., 2014] and called OEI-Z hereafter.

Figure 6.7b shows the OEI computed from IASIMLS-a, MLS-a, DM and OMI-MLS.

Our OEI indices from OMI-MLS, DM, MLS-a and IASIMLS-a are computed without time averaging, by subtraction of TCO in the POC region from TCO averaged over the IIO region.

As defined by the NOAA, the two ENSO phases occur when the Niño 3.4 index is higher than 0.5 (corresponding to El Niño) and lower than -0.5 (corresponding to La Niña) during five consecutive months. Thus, in the analysed period an El Niño starts on July 2008 with a maximum on January 2010, and an La Niña starts on July 2010 with a maximum on January 2011.

The two time series of OEI-Z and OMI-MLS appear remarkably similar (figure 6.7a), except around January 2008. For this period they are out of phase with the Niño 3.4.

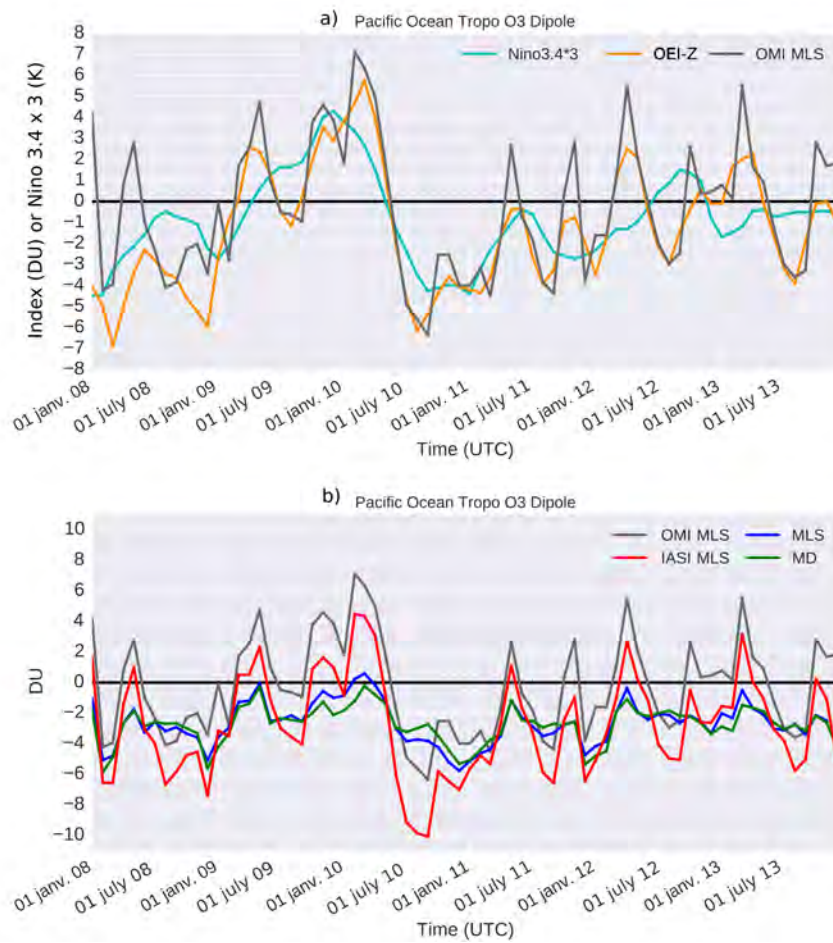


Figure 6.7: a) Monthly mean tropospheric Ozone ENSO Index (in DU) derived from the OMI-MLS data (grey line). Also shown is the Niño 3.4 monthly temperature anomaly ENSO index (cyan curve, multiplied by a factor 3, in Kelvin) and the OEI-Z index derived from the OMI-MLS data with a deseasonalization followed by sliding average of 3 month (orange curve). b) the OMI-MLS data (grey curve) as in the above plot, the MLS-a (in blue curve), the DM in green curve and the IASIMLS-a (in red curve). All ENSO indexes extend from January 2008 through December 2013.

The discrepancy is attributed to the phase opposition between the interannual and intraseasonal variability of the TCO [Ziemke et al., 2014] linked with the intraseasonal Madden Julian Oscillation (MJO, [Madden and Julian, 1972, Madden and Julian, 1994]. The MJO increases the differences between OEI-Z and OMI-MLS in 2008. Detailing the effect of MJO on monthly OEI is beyond the scope of our current study.

As expected, the OEI from OMI-MLS shows a consistent variability with OEI-Z, in particular the maxima and minima agree and are well correlated to the Niño 3.4 index. Since the OMI-MLS OEI is obtained from monthly averages it exhibits shorter term variability than OEI-Z and can be directly compared to the indexes derived from the model simulations.

The DM OEI (figure 6.7b, green curve) is negative during the whole period, corresponding to a tropospheric col-

umn higher over the POC region than over the IIO region. The DM OEI variations show some features of the ENSO, with a relative maxima in January 2010 followed by a minima at the end of the same year, but the intensity is weak, about three times lower than values observed with OMI-MLS. The MLS-a produces an OEI very similar to DM. As already discussed, constraining the ozone profile in the stratosphere has little impact on the quality of the modelled ENSO  $O_3$  signal.

With the IASIMLS-a we can quantify the contribution of IASI data in the computed OEI (figure 6.7b, red curve). Compared to DM and MLS-a simulations the IASIMLS-a analysis produces OEI in better agreement with the ones derived from OMI-MLS. OEI variations are in phase with a very good match of periods of maxima and minima. There is however a constant bias of approximately 2.4 DU between the indexes of OMI-MLS and IASIMLS-a. As discussed in section 6.2, IASIMLS-a bias in the lower troposphere is larger in the POC region than in the IIO region. This difference of biases between POC and IIO regions affects the determination of the OEI. In addition, during ENSO events we have seen from the Hovmöller plots in section 6.5.2 that during La Niña the TCO maximum with IASIMLS-a is slightly shifted to the Western part of the POC region compared to the OMI-MLS data. The difference in the location of maximum over the Eastern Pacific between OMI-MLS and IASIMLS-a explains part of the difference in the OEI absolute the values during El Niño and La Niña events (figure 6.7).

Tropospheric ozone variability during ENSO is therefore very well captured from the OEI variations computed from IASIMLS-a, despite a constant bias in

the boundary layer. Further insights in the vertical distribution of  $O_3$  over the POC and IIO regions during ENSO are discussed in the next section.

### Vertical structures of $O_3$

The evaluations of TCO obtained with the OMI-MLS by subtracting stratospheric ozone from MLS from the total ozone from OMI cannot give information on the vertical structure of the  $O_3$  anomalies forced by ENSO. This is clearly an advantage of model assimilations that can give a complete 3D structure of the ozone fields with no gaps due to orbitography and clouds. We focus here on the information brought by the assimilation of IASI and MLS data in describing the vertical ozone response to ENSO in the POC and IIO regions.

Figure 6.8 shows monthly mean ozone profiles for IASIMLS-a, MLS-a and DM, over the six year record. The tropopause pressure for the three simulations is about 100hPa. Ozone concentration in this layer is around 70 ppbv.

Due to the limitations of the model and the lack of information brought by the two instruments in the boundary layer, as already discussed, we focus our analysis in the IIO et POC regions on the free troposphere, between 750 hPa and 100 hPa.

The DM (figure 6.8a,b) and MLS-a (figure 6.8c,d) produce very close distributions of the vertical ozone concentration. The MLS-a simulation shows slightly more ozone in the lower stratosphere and upper troposphere, but the fluctuations of the concentration have similar amplitudes in both simulations. Particularly noticeable is the signal during the 2010 El Niño with low ozone values in the POC region during the first months of the year linked to increased convection and associated upward mo-



tions, and an opposite behaviour in the IIO region with subsidence and increased ozone down to the middle troposphere. This footprint of ENSO is very well captured with the IASIMLS-a simulation, especially over the POC region. Over that region the ozone content is lower than 35 ppbv during El Niño and larger

than 50 ppbv during La Niña. The information brought by IASI is very significant, the amplitude of the ozone change between El Niño and La Niña periods is 2 to 3 time larger with IASIMLS-a assimilation than it is with DM and MLS-a simulations.

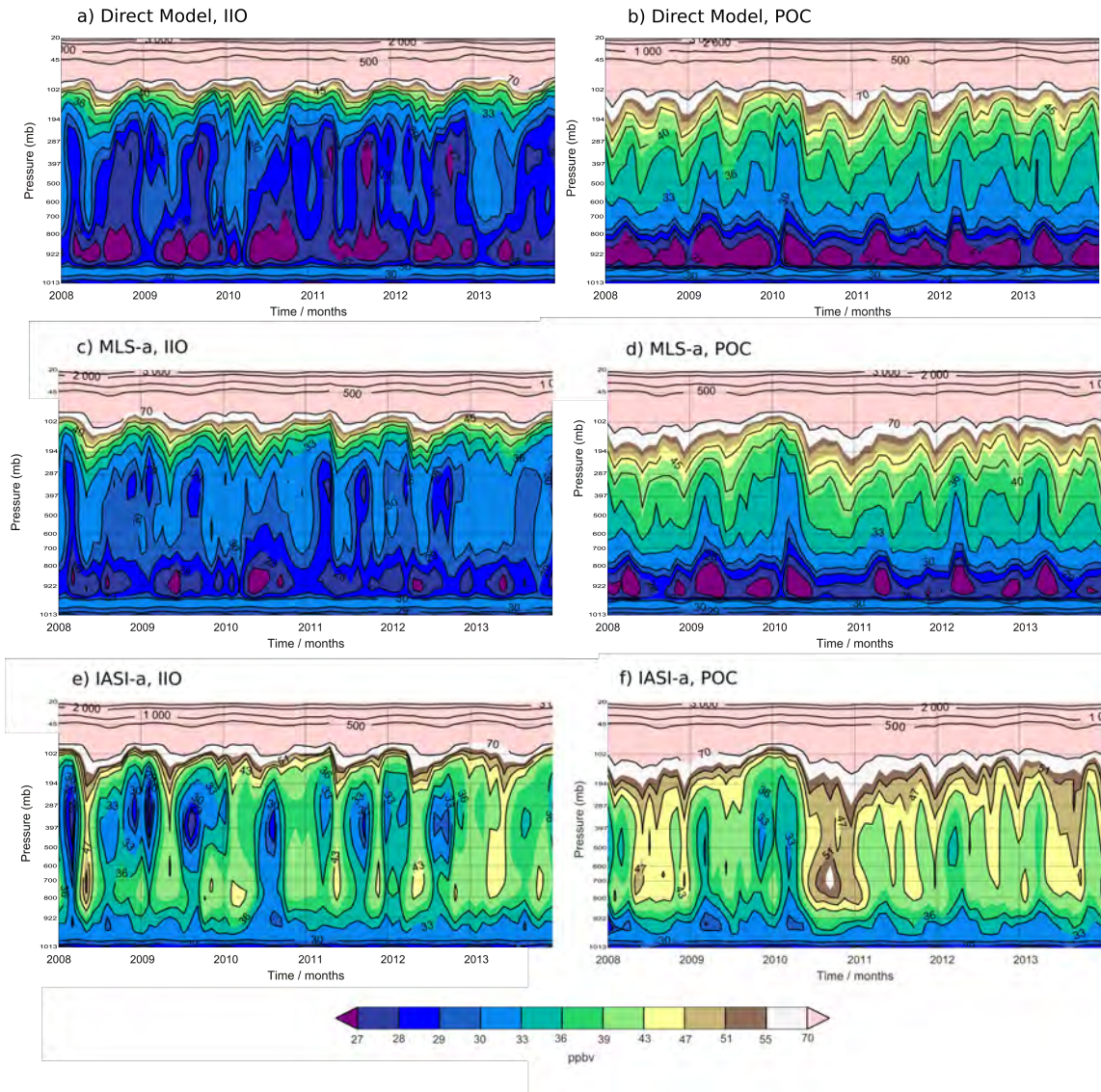


Figure 6.8: Monthly mean time series of ozone vertical profiles (units ppbv) versus pressure for the IIO region (left panels) and the POC region (right panels). The abscissa goes from the January 2008 to the December 2013. The top panels correspond to the Direct-Model, the middle panels to the MLS-a and the bottom panels to the IASIMLS-a simulations. Pressure scale goes from 1013 hPa to 20 hPa.

If we refer to OEI indexes (figure 6.7) some ENSO activity is detected in late 2012 early 2013. Indeed an  $O_3$  minimum in early 2013 followed by a maximum in the middle of the year is clearly visible in the IASIMLS-a assimilation in the POC region. The amplitude of the ENSO signal on ozone is lower than for the 2010 event, in agreement with the lower values of the Niño 3.4 index.

Also more clearly visible with IASIMLS-a is the seasonal variations of the ozone content in the IIO region that is quite regular outside ENSO periods. In that region the annual periodicity of ozone is much pronounced in comparison of the more erratic variations shown in the POC region. The regularity of the ozone fluctuation is more pronounced in IASIMLS-a assimilation than in DM and MLS-a simulations. In addition to the influence of atmospheric dynamics, biomass burning and the associated ozone production could trigger the seasonal fluctuations. Such an ozone production detected by the IASI instrument (and therefore visible in IASIMLS-a) cannot be reproduced by the DM and MLS-a simulations due to the simplified chemical scheme.

Overall the combination of the IASI ozone tropospheric retrievals and our 4D-Var algorithm produces a very consistent dataset for the study of the influence of ENSO on the ozone distribution from the stratosphere to the middle troposphere. The quality of IASIMLS-a, which also includes the assimilation of MLS, is good in stratosphere down to the middle atmosphere. In the boundary layer, below 800 hPa, a comprehensive chemical scheme with adequate emissions should be used to improve the assimilation since there are no global observations of the ozone content in this layer over the equatorial regions.

## 6.6 Summary and conclusion

Six years (from January 2008 to December 2013) of 6-hourly tropospheric ozone fields have been derived assimilating IASI and MLS ozone measurements in the MOCAGE CTM. The assimilation of IASI tropospheric columns combined with MLS stratospheric profiles has been first validated against ozonesondes in the tropical band ( $15^\circ$  S -  $15^\circ$  N), providing a statistically robust validation. In the tropical band and over the whole period, IASIMLS-a gives results similar to ozonesondes and reproduces well the ozone variability despite a constant bias. Biases in the analysis come from the low accuracy of the model in the boundary layer. The ozone linear scheme in MOCAGE does not take surface emissions into account. In addition, IASI has a weak sensitivity in the boundary layer therefore not bringing additional information on  $O_3$  content in this layer. A second validation has been done over the Pacific ocean and over Southern Asia (longitude band of  $70^\circ$  E to  $110^\circ$  W). During the 2008 - 2013 period, an ENSO event developed with its two phases : El Niño in winter 2010 and La Niña in winter 2011. IASIMLS-a has been validated in two areas : the Indonesia and Indian Ocean (IIO) and the Pacific Ocean Center (POC) regions. In both regions, biases appear and are larger in the POC region. The weak sensitivity of IASI sounding in the boundary layer is responsible for these biases. However, the tropospheric ozone variability related to the Walker Circulation and to the ENSO event is well reproduced with IASIMLS-a.

OMI-MLS tropospheric columns have been used and validated by several past studies. We have used OMI-MLS

ozone data to characterize the links between SST and tropospheric  $O_3$  and to compare with our IASIMLS-a assimilation. Anomalies of TCO have been computed allowing a comparison between IASIMLS-a and the two other simulations (Direct-Model and MLS-a) with OMI-MLS. Anomalies of the Direct-Model (MOCAGE without assimilation) are similar to anomalies of MLS-a (assimilation of MLS stratospheric profiles). The good reproduction of anomalies in term of location and timing between Eastern and Western regions in both simulations are due to the transport forced by the winds from the ECMWF meteorological analyses. However, the amplitude of anomalies is lower than in OMI-MLS data. Assimilation of IASI data corrects this behaviour, the anomalies of IASIMLS-a appear very similar to the OMI-MLS anomalies. In particular, the IASI data bring essential information to reproduce the Eastern shift of TCO caused by El Niño.

In order to study the ability of IASIMLS-a to reproduce the ozone variability caused by El Niño and La Niña phases, we have used the OEI. The OEI represents an essential diagnostic test for models that should be able to represent ozone features linked with ENSO changes in tropospheric dynamic. OEI from IASIMLS-a shows variations similar to those of OMI-MLS with a small bias corresponding to higher TCO over the POC than over the IIO region. Direct-Model and MLS-a have the same bias. This bias has been located in the boundary layer with the comparison with the Ozonesondes.

We also examine the vertical structures of tropospheric ozone in the IIO and POC regions, with the three simulations (Direct-Model, MLS-a and IASIMLS-a), in order to show the contri-

bution of IASI tropospheric data in the assimilation. The IASIMLS-a analysis is consistent with the ozone movements in adequation with subsidences and convergences generated by El Niño and La Niña on both IIO and POC regions. IASI assimilation gives a very valuable high resolution dataset suitable to perform analyses of the  $O_3$  variability in the upper and middle troposphere for short term and inter-annual time scales in the tropical band.

Overall, the assimilation of stratospheric MLS and tropospheric IASI data within MOCAGE gives a good representation of the tropospheric ozone variability linked with ENSO and the Walker circulation. There are however some limitations in our simulations that have to be addressed. One of them is the bias found in the boundary layer over the Pacific Ocean that affects the calculation of the OEI. In this study we have used a linear ozone parameterization to compute the ozone chemical tendencies. This approach is suitable for the free troposphere and the stratosphere but is certainly not adequate for the boundary layers. In the future we plan to use a more comprehensive chemical scheme that accounts for the surface emissions. The computational cost of these simulations will be however much larger.

With the use of IASI data we have demonstrated here the value of assimilating satellite data that document the direct information in the tropospheric ozone content to compute OEI. This approach is promising because many types of data can enter in an assimilation process, soundings, aircraft, etc... Improvements in the tropospheric ozone content evaluations can be expected from an increase in assimilated data. With the IASI measurements in particular, data are available since 2007 and with IASI-

NG (IASI next generation) data should be provided for 20 more years after 2021. Times series of IASI analysis could then be derived and used to study the tropospheric ozone variability over at least a thirty-year period.

## Acknowledgements

We would like to thank Jerry R. Ziemke and the Aura Ozone Monitoring Instrument (OMI) science team of the NASA Goddard Space Flight Center to the availability of the OMI-MLS data and the OEI-Z Index. We also thank WOUDC for providing ozone sonde station data and the NASA Jet Propulsion Laboratory for the availability of Aura MLS data. We also acknowledge the mission scientists from the NASA GES DISC, who provided the GIOVANNI SST data used in this research.



# Bibliography

- monsoon. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(14):9129–9147.
- [Bell et al., 2004] Bell, M., McDermott, A., Zeger, S., Samet, J., and Dominici, F. (2004). Ozone and mortality in 95 US urban communities, 1987 to 2000. *JAMA, National Institutes of Health*, 292(19):2372–2378.
- [Andreae et al., 1998] Andreae, M. O., Andreae, T. W., Annegarn, H., Beer, J., Cachier, H., Canut, P. L., Elbert, W., Maenhaut, W., Salma, I., Wienhold, F. G., and Zenker, T. (1998). Airborne studies of aerosol emissions from savanna fires in southern Africa. *Journal of Geophysical Research: Space Physics*, 103(D24):32119–32128.
- [Ardanuy and Lee Kyle, 1985] Ardanuy, P. and Lee Kyle, H. (1985). El Nino and Outgoing Longwave Radiation : Observations from Nimbus-7 ERB. *American Meteorological Society*, 114:415–433.
- [Barnston et al., 1997] Barnston, A. G., Chelliah, M., and Goldenberg, S. B. (1997). Documentation of a Highly ENSO-related SST region in the Equatorial Pacific. *Atmosphere-Ocean*, 35:367–383.
- [Barret et al., 2011] Barret, B., Le Flochmoen, E., Sauvage, B., Pavelin, E., Matricardi, M., and Cammas, J. P. (2011). The detection of post-monsoon tropospheric ozone variability over south Asia using IASI data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(18):9533–9548.
- [Barret et al., 2016] Barret, B., Sauvage, B., Bennouna, Y., and Le Flochmoen, E. (2016). Upper-tropospheric CO and O<sub>3</sub> budget during the Asian summer monsoon. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(14):9129–9147.
- [Berrisford et al., 2011] Berrisford, P., Dee, D. P., Poli, P., Brugge, R., Fielding, K., Fuentes, M., Kallberg, P. W., Kobayashi, S., Uppala, S., and Simmons, A. (2011). The ERA-Interim archive Version 2.0. Shinfield Park, Reading.
- [Bousserez et al., 2007] Bousserez, N., Attié, J. L., Peuch, V. H., Michou, M., Pfister, G., Edwards, D., Emmons, L., Mari, C., Barret, B., Arnold, S. R., Heckel, A., Richter, A., Schlager, H., Lewis, A., Avery, M. A., Sachse, G. W., Browell, E. V., and Hair, J. W. (2007). Evaluation of the MOCAGE chemistry transport model during the ICARTT/ITOP experiment. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(10):1–18.
- [Cariolle and Teyssedre, 2007] Cariolle, D. and Teyssedre, H. (2007). A revised linear ozone photochemistry parameterization for use in transport and general circulation models : multi-annual simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (2006):2183–2196.
- [Chandra et al., 2002] Chandra, S., Ziemke, J., Barthia, P., and Martin, R. (2002). Tropical tropospheric ozone : Implications for dynamics and biomass burning. *Journal of Geophysical Research*, 107(No. D14, 4188).

- [Chandra et al., 2009] Chandra, S., Ziemke, J. R., Duncan, B. N., Diehl, T. L., Livesey, N. J., and Froidevaux, L. (2009). Effects of the 2006 El Niño on tropospheric ozone and carbon monoxide: implications for dynamics and biomass burning. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(13):4239–4249.
- [Chandra et al., 1998] Chandra, S., Ziemke, J. R., Min, W., and Read, W. G. (1998). Effects of 1997-1998 El Niño on tropospheric ozone and water vapor.
- [Clerbaux et al., 2009] Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F. (2009). Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16):6041–6054.
- [Coheur et al., 2009] Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C. (2009). IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(2):8757–8789.
- [Cooper et al., 2014] Cooper, O. R., Parrish, D. D., Ziemke, J., Balashov, N. V., Cupeiro, M., Galbally, I. E., Gilge, S., Horowitz, L., Jensen, N. R., Lamarque, J.-F., Naik, V., Oltmans, S. J., Schwab, J., Shindell, D. T., Thompson, a. M., Thouret, V., Wang, Y., and Zbinden, R. M. (2014). Global distribution and trends of tropospheric ozone: An observation-based review. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 2:000029.
- [Craig, 1965] Craig, R.-A. (1965). The upper atmosphere, meteorology and physics. *Academic Press*, 8:23–25.
- [Curtis and Adler, 2000] Curtis, S. and Adler, R. (2000). ENSO indices based on patterns of satellite-derived precipitation. *Journal of Climate*, 13(15):2786–2793.
- [Dobber et al., 2006] Dobber, M. R., Dirksen, R. J., Levelt, P. F., Van Den Oord, G. H. J., Voors, R. H. M., Kleipool, Q., Jaross, G., Kowalewski, M., Hilsenrath, E., Leppelmeier, G. W., De Vries, J., Dierssen, W., and Rozemeijer, N. C. (2006). Ozone monitoring instrument calibration. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5):1209–1238.
- [Doherty et al., 2005] Doherty, R. M., Stevenson, D. S., Collins, W. J., and Sanderson, M. G. (2005). Influence of convective transport on tropospheric ozone and its precursors in a chemistry-climate model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3):3747–3771.
- [Doherty et al., 2006] Doherty, R. M., Stevenson, D. S., Johnson, C. E., Collins, W. J., and Sanderson, M. G. (2006). Tropospheric ozone and El Niño–Southern Oscillation: Influence of atmospheric dynamics, biomass burning emissions, and future climate change. *Journal of Geophysical Research*, 111(D19):1–21.
- [Dufour et al., 2012] Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., LeFlochmoën, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D. (2012). Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra us-

- ing ozonesondes. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(3):611–630.
- [Dufour et al., 2010] Dufour, G., Eremenko, M., Orphal, J., and Flaud, J.-M. (2010). IASI observations of seasonal and day-to-day variations of tropospheric ozone over three highly populated areas of China: Beijing, Shanghai, and Hong Kong. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(8):3787–3801.
- [Ebi and McGregor, 2008] Ebi, K. L. and McGregor, G. (2008). Climate change, tropospheric ozone and particulate matter, and health impacts. *Environmental Health Perspectives*, 116(11):1449–1455.
- [El Amraoui et al., 2010] El Amraoui, L., Attié, J., Semane, N., Claeyman, M., Peuch, V., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J., Piacentini, A., and Josse, B. (2010). Midlatitude stratosphere–troposphere exchange as diagnosed by MLS O<sub>3</sub> and MOPITT CO assimilated fields. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:2175–2194.
- [Emili et al., 2014] Emili, E., Barret, B., Massart, S., Le Flochmoen, E., Piacentini, A., El Amraoui, L., Pannekoek, O., and Cariolle, D. (2014). Combined assimilation of IASI and MLS observations to constrain tropospheric and stratospheric ozone in a global chemical transport model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(1):177–198.
- [Fowler et al., 2008] Fowler, D., Amann, M., Anderson, R., Ashmore, M., Cox, P., Depledge, M., Derwent, D., Grennfelt, P., Hewitt, N., Hov, O., Jenkin, M., Kelly, F., Liss, P., Pilling, M., Pyle, J., Slingo, J., and Stevenson, D. (2008). *Ground-level ozone in the 21st century: future trends, impacts and policy implications*. Number October.
- [Froidevaux et al., 2008] Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A., McGee, T. J., Twigg, L. W., Sumnicht, G. K., Jucks, K. W., Margitan, J. J., Sen, B., Stachnik, R. A., Toon, G. C., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Manney, G. L., Schwartz, M. J., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., and Wagner, P. A. (2008). Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113(D15):D15S20.
- [Geer et al., 2006] Geer, A. J., Lahoz, W. A., Bekki, S., Bormann, N., Errera, Q., Eskes, H. J., Fonteyn, D., Jackson, D. R., Jukes, M. N., Massart, S., Peuch, V. H., Rharmili, S., and Segers, A. (2006). The ASSET intercomparison of ozone analyses: Method and first results. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12):5445–5474.
- [Guilbert, 2003] Guilbert, J. J. (2003). The world health report 2002 - reducing risks, promoting healthy life. *Education for health (Abingdon, England)*, 16(2):230.
- [Herbin et al., 2009] Herbin, H., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Clarisse, L., and Coheur, P. (2009). H<sub>2</sub>16O and HDO measurements with IASI / MetOp. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:9433–9447.

- [Honoré et al., 2008] Honoré, C., Rouil, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J. M., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V. H., and Poisson, N. (2008). Predictability of European air quality: Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV’AIR system. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 113(4).
- [Houghton et al., 2001] Houghton, J., Ding, Y., Griggs, D., Noguer, M., Van der Linden, P., Dai, X., Maskell, K., and Johnson, C. (2001). Climate Change 2001: The Scientific Basis. *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, page 881.
- [Josse et al., 2004] Josse, B., Simon, P., and Peuch, V. H. (2004). Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 56(4):339–356.
- [Kim and Newchurch, 1998] Kim, J. H. and Newchurch, M. (1998). Biomass-burning influence on tropospheric ozone over New Guinea and South America. *Journal of Geophysical Research*, 103:1455–1461.
- [Lacis et al., 1990] Lacis, A., Wuebbles, D., and Logan, J. (1990). Radiative forcing of climate by changes in the vertical distribution of ozone. *J. Geophys. Res.*, 95:9971–9981.
- [Lee et al., 2010] Lee, S., Shelow, D. M., Thompson, a. M., and Miller, S. K. (2010). QBO and ENSO variability in temperature and ozone from SHADOZ, 1998–2005. *Journal of Geophysical Research*, 115(D18):D18105.
- [Levelt et al., 2006] Levelt, P. F., van den Oord, G. H. J., Dobber, M. R., Malkki, A., Visser, H., de Vries, J., Stammes, P., Lundell, J. O. V., and Saari, H. (2006). The ozone monitoring instrument. *Ieee Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5):1093–1101.
- [Liu and Nocedal, 1989] Liu, D. C. and Nocedal, J. (1989). On the limited memory BFGS method for large scale optimization. *Mathematical Programming*, 45(1-3):503–528.
- [Liu et al., 2017] Liu, J., Rodriguez, J. M., Steenrod, S. D., Douglass, A. R., Logan, J. A., Olsen, M. A., Wargan, K., and Ziemke, J. R. (2017). Causes of interannual variability over the southern hemispheric tropospheric ozone maximum. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(5):3279–3299.
- [Liu et al., 2010] Liu, X., Bhartia, P. K., Chance, K., Froidevaux, L., Spurr, R. J. D., and Kurosu, T. P. (2010). Validation of Ozone Monitoring Instrument (OMI) ozone profiles and stratospheric ozone columns with Microwave Limb Sounder (MLS) measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:24913–24943.
- [Livesey et al., 2011] Livesey, N. J., Read, W. G., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Schwartz, M. J., Wang, S., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Fuller, R. a., Jarnot, R. F., Jiang, J. H., Knosp, B. W., Stek, P. C., Wagner, P. a., and Wu, D. L. (2011). EOS MLS Version 3.3 Level 2 data quality and description document. *Technical Report, Jet Propulsion Laboratory*, pages 1–162.

- [Livesey et al., 2016] Livesey, N. J., Read, W. G., Wagner, P. A., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Millan Valle, L. F., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., and Michael J. Schwartz, Shuhui Wang, Ryan A. Fuller, Robert F. Jarnot, Brian W. Knosp, E. M. (2016). EOS MLS Version 4.2x Level 2 data quality and description document. Technical report.
- [Madden and Julian, 1972] Madden, R. a. and Julian, P. R. (1972). Description of Global-Scale Circulation Cells in the Tropics with a 40–50 Day Period.
- [Madden and Julian, 1994] Madden, R. a. and Julian, P. R. (1994). Observations of the 40–50-Day Tropical Oscillation—A Review. *Monthly Weather Review*, 122:814–837.
- [Marécal et al., 2015] Marécal, V., Peuch, V. H., Andersson, C., Andersson, S., Arteta, J., Beekmann, M., Benedictow, A., Bergström, R., Bessagnet, B., Cansado, A., Chéroux, F., Colette, A., Coman, A., Curier, R. L., Van Der Gon, H. A., Drouin, A., Elbern, H., Emili, E., Engelen, R. J., Eskes, H. J., Foret, G., Friese, E., Gauss, M., Giannaros, C., Guth, J., Joly, M., Jaumouillé, E., Josse, B., Kadygrov, N., Kaiser, J. W., Krajsek, K., Kuenen, J., Kumar, U., Liora, N., Lopez, E., Malherbe, L., Martinez, I., Melas, D., Meleux, F., Menut, L., Moinat, P., Morales, T., Parmentier, J., Piacentini, A., Plu, M., Poupkou, A., Queguiner, S., Robertson, L., Rouil, L., Schaap, M., Segers, A., Sofiev, M., Tarasson, L., Thomas, M., Timmermans, R., Valdebenito, Van Velthoven, P., Van Versendaal, R., Vira, J., and Ung, A. (2015). A regional air quality forecasting system over Europe: The MACC-II daily ensemble production. *Geoscientific Model Development*, 8(9):2777–2813.
- [Massart et al., 2009] Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J. (2009). First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14):5073–5091.
- [Massart et al., 2010] Massart, S., Pajot, B., Piacentini, A., and Pannekoucke, O. (2010). On the Merits of Using a 3D-FGAT Assimilation Scheme with an Outer Loop for Atmospheric Situations Governed by Transport. *Monthly Weather Review*, 138(12):4509–4522.
- [Matsueda et al., 2002] Matsueda, H., Taguchi, S., Inoue, H. Y., and Ishii, M. (2002). A large impact of tropical biomass burning on CO and CO<sub>2</sub> in the upper troposphere. *Science In China Series C-Life Sciences*, 45(October):116–125.
- [Neu et al., 2014] Neu, J. L., Flury, T., Manney, G. L., Santee, M. L., Livesey, N. J., and Worden, J. (2014). Tropospheric ozone variations governed by changes in stratospheric circulation. *Nature Geoscience*, 7(May):340–344.
- [Oetjen et al., 2016] Oetjen, H., Payne, V. H., Neu, J. L., Kulawik, S. S., Edwards, D. P., Eldering, A., Worden, H. M., and Worden, J. R. (2016). A joint data record of tropospheric ozone from Aura-TES and MetOp-IASI. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(15):10229–10239.
- [Olsen et al., 2016] Olsen, M. A., Wargan, K., and Pawson, S. (2016). Tropospheric column ozone response to

- ENSO in GEOS-5 assimilation of OMI and MLS ozone data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(11):7091–7103.
- [Oman et al., 2013] Oman, L. D., Douglass, A. R., Ziemke, J. R., Rodriguez, J. M., Waugh, D. W., and Nielsen, J. E. (2013). The ozone response to enso in aura satellite measurements and a chemistry-climate simulation. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(2):965–976.
- [Oman et al., 2011] Oman, L. D., Ziemke, J. R., Douglass, A. R., Waugh, D. W., Lang, C., Rodriguez, J. M., and Nielsen, J. E. (2011). The response of tropical tropospheric ozone to ENSO. *Geophysical Research Letters*, 38(13):2–7.
- [Pavelin et al., 2008] Pavelin, E., English, S., and Eyre, J. (2008). The assimilation of cloud-affected infrared satellite radiances for numerical weather prediction. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 134(March):737–749.
- [Philander S. G., 1989] Philander S. G. (1989). El Niño, La Nina, and the Southern Oscillation. *Academic Press*, 46:293.
- [Pittman et al., 2009] Pittman, J. V., Pan, L. L., Wei, J. C., Irion, F. W., Liu, X., Maddy, E. S., Barnett, C. D., Chance, K., and Gao, R. S. (2009). Evaluation of AIRS, IASI, and OMI ozone profile retrievals in the extra-tropical tropopause region using in situ aircraft measurements. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 114(24):1–17.
- [Quan et al., 2004] Quan, X.-W., Diaz, H. F., and Hoerling, M. P. (2004). Change of the Tropical Hadley Cell Since 1950. *The Hadley Circulation: Present, Past and Future*, pages 85–120.
- [Safieddine et al., 2013] Safieddine, S., Clerbaux, C., George, M., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Coheur, P. F., Wespes, C., Loyola, D., Valks, P., and Hao, N. (2013). Tropospheric ozone and nitrogen dioxide measurements in urban and rural regions as seen by IASI and GOME-2. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(18):10555–10566.
- [Scannell et al., 2012] Scannell, C., Hurtmans, D., Boynard, A., Hadji-Lazaro, J., George, M., Delcloo, A., Tuinder, O., Coheur, P.-F., and Clerbaux, C. (2012). Antarctic ozone hole as observed by IASI/MetOp for 2008–2010. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(1):123–139.
- [Schwartz et al., 2015] Schwartz, M., Froidevaux, L., Livesey, N., and Read, W. (2015). MLS/Aura Level 2 Ozone (O<sub>3</sub>) Mixing Ratio V004. *Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center (GES DISC)*.
- [Sič et al., 2015] Sič, B., El Amraoui, L., Marécal, V., Josse, B., Arteta, J., Guth, J., Joly, M., and Hamer, P. D. (2015). Modelling of primary aerosols in the chemical transport model MOCAGE: Development and evaluation of aerosol physical parameterizations. *Geoscientific Model Development*, 8(2):381–408.
- [Sič et al., 2016] Sič, B., El Amraoui, L., Piacentini, A., Marécal, V., Emili, E., Cariolle, D., Prather, M., and Attie, J. L. (2016). Aerosol data assimilation in the chemical transport model MOCAGE during

- the TRAQA/ChArMEx campaign: Aerosol optical depth. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(11):5535–5554.
- [Sinha et al., 2004] Sinha, P., Jaeglé, L., Hobbs, P. V., and Liang, Q. (2004). Transport of biomass burning emissions from southern Africa. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 109(20):1–15.
- [Solomon et al., 2005] Solomon, S., Thompson, D. W. J., Portmann, R. W., Oltmans, S. J., and Thompson, a. M. (2005). On the distribution and variability of ozone in the tropical upper troposphere: Implications for tropical deep convection and chemical-dynamical coupling. *Geophysical Research Letters*, 32(23):L23813.
- [Stevenson et al., 2005] Stevenson, D., Doherty, R., Sanderson, M., Johnson, C., and Derwent, R. (2005). Impacts of climate change and variability on tropospheric ozone and its precursors. *Faraday Discuss.*
- [Streets et al., 2003] Streets, D. G., Yarber, K. F., Woo, J.-H., and Carmichael, G. R. (2003). Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. *Global Biogeochemical Cycles*, 17(4):1099.
- [Sudo and Takahashi, 2001a] Sudo, K. and Takahashi, M. (2001a). Simulation of tropospheric ozone changes during 1997-1998 El Nino: Meteorological impact on tropospheric photochemistry. *Geophysical Research Letters*, 28(21):4091–4094.
- [Sudo and Takahashi, 2001b] Sudo, K. and Takahashi, M. (2001b). Simulation of tropospheric ozone changes during 1997-1998 El Nino: Meteorological impact on tropospheric photochemistry. *Geophysical Research Letters*, 28(21):4091–4094.
- [Teyssède et al., 2007] Teyssède, H., Michou, M., Clark, H. L., Josse, B., Karcher, F., Olivié, D., Peuch, V.-H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J.-L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thouret, V., van der A, R. J., Volz-Thomas, A., and Chéroux, F. (2007). A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(22):5815–5860.
- [Thompson et al., 2003] Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W., Posny, F., Coetzee, G. J., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogaawa, T., Johnson, B. J., Vomel, H., and Labow, G. (2003). Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 1. Comparaison with Total Ozone Mapping Spectrometer and ground-based measurements. *Journal of Geophysical Research*, 108(D2):8241.
- [Tocquer et al., 2015] Tocquer, F., Barret, B., Mari, C., Flochmoën, E. L. E., Cammas, J. P., and Sauvage, B. (2015). An upper tropospheric ‘ozone river’ from Africa to India during the 2008 Asian post-monsoon season. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 67(1).
- [Tohir et al., 2015] Tohir, A. M., Bencherif, H., Sivakumar, V., El Amraoui, L., Portafaix, T., and Mbatha,

## 6.7 Conclusion de l'article

La capacité de IASIMLS-a à reproduire une variabilité saisonnière intense de l'ozone troposphérique durant un événement singulier, a été étudiée et démontrée. L'étude a porté sur la variabilité de l'ozone troposphérique liée aux oscillations de l'ENSO dans l'océan pacifique tropical.

Des trois simulations, seul IASIMLS-a est capable de reproduire la variabilité de la TCO observée par les sondes dans les tropiques (entre 15° S et 15° N) et sur toute la période d'étude. Ce résultat était attendu du fait de l'importante sensibilité des données IASI dans la troposphère. Cependant la colonne troposphérique de IASIMLS-a est légèrement biaisée. En examinant les profils d'ozone dans la couche limite et la troposphère libre, il s'avère que dans la couche limite IASIMLS-a a plus de biais que le modèle direct et MLS-a. L'apparition de biais dans la couche limite provient des limitations du schéma linéaire CARIOLLE (cf chapitre 2) utilisé dans le modèle MOCAGE. Dans la couche limite, la variabilité d'ozone des trois simulations est identique, même si IASIMLS-a reproduit légèrement mieux la variabilité des sondes. Dans la troposphère libre, la sensibilité des mesures de IASI est à son maximum, fournissant une analyse ayant de meilleurs résultats en termes de concentration d'ozone et de biais par rapport aux deux autres simulations. L'apparition de biais dans la TCO avec IASIMLS-a est due à la faible sensibilité des données IASI dans la couche limite. Cependant, la couche limite planétaire ne correspond approximativement qu'à 12 % de la TCO. Le problème associé à cette couche a donc un impact limité dans la TCO de IASIMLS-a.

La seconde validation a été effectuée sur les deux régions entre 70° E et 110° W : l'océan Indien et l'Indonésie (IIO) et l'océan Pacifique central (POC) ont montré que des biais apparaissent et qu'ils sont plus importants pour la région POC. La faible sensibilité des données IASI dans la couche limite planétaire en est responsable. Malgré ces biais, les variations saisonnières de l'ozone, entre ces deux régions sont bien reproduites avec IASIMLS-a. Les oscillations saisonnières de l'ozone, induites par la pollution anthropogénique et par l'ENSO sont reproduites avec IASIMLS-a, malgré une légère sur-estimation.

Alors que le modèle direct et MLS-a montrent peu de variabilité d'ozone liée à l'ENSO, IASIMLS-a observe distinctement les oscillations et propagations d'ozone causées par l'ENSO. Cette identification des déplacements longitudinaux de la colonne d'ozone troposphérique avec IASIMLS-a est mise en évidence grâce au calcul des anomalies de TCO, effectué pour mieux comparer IASIMLS-a et les deux autres simulations avec OMI-MLS.

L'Ozone ENSO Index (OEI) a été utilisé et calculé pour chaque simulation afin d'étudier la capacité de IASIMLS-a à reproduire la variabilité de l'ozone causée par El Niño et La Niña. Le modèle direct possède un indice d'ENSO négatif sur toute la période, signifiant que le modèle direct reproduit plus de TCO sur la région POC que sur la région IIO et ne reproduit que faiblement l'intensité de l'ENSO. MLS-a possède également un indice négatif, excepté en janvier 2010, probablement lié à la formation de subsidence lors d'El Niño. Cependant, l'intensité de l'ENSO est, tout comme le modèle direct, faiblement reproduite.

Le calcul de l'OEI montre la nécessité d'apporter des informations provenant



aussi bien de la troposphère que de la stratosphère dans le modèle MOCAGE afin de suivre l'intensité de l'ENSO. Malgré le biais toujours présent entre les indices calculés pour OMI-MLS et pour IASIMLS-a, IASIMLS-a reproduit la même variabilité et intensité observée avec OMI-MLS et permet donc de suivre l'influence de l'ENSO sur l'ozone troposphérique. Pour terminer, l'étude des structures verticales de l'ozone troposphérique sur les régions IIO et POC a montré que les données troposphériques de IASI apportaient une information sur la verticale dans la troposphère libre supplémentaire au modèle direct et aux données MLS. Il reste cependant quelques limites dans l'utilisation des données IASI troposphérique. Il s'agit des biais de la couche limite observés sur le Pacifique et qui se répercutent dans le calcul de l'OEI. Bien que l'utilisation du schéma linéaire CARIOLLE soit adaptée pour la troposphère libre et la stratosphère, elle l'est moins pour la couche limite. Il serait nécessaire de prendre en compte les émissions de surface dans la paramétrisation du schéma d'ozone. Des observations de surface pourraient également être assimilées dans l'analyse pour apporter des informations dans la couche limite, là où ni le schéma ni les données IASI n'en apportent. Il n'est pas improbable qu'une partie des biais ajoutés avec la simulation IASIMLS-a, aussi bien dans le calcul de l'OEI que pour la validation contre les sondes dans la couche limite, proviennent des restitutions de IASI. Ce point fait l'objet du chapitre suivant.

Malgré la présence de biais, l'intérêt d'assimiler les données satellitaires provenant directement de la troposphère, dans un modèle de chimie-transport a été démontré avec cette étude.



## Chapitre 7

# Développement d'un a-priori dynamique et améliorations des restitutions d'ozone IASI

Ce chapitre a pour objectif de comprendre et de réduire les biais observés entre l'analyse IASIMLS-a effectuée à partir des restitutions IASI-SOFRID et les sondes. Bien que des biais soient introduits par le modèle MOCAGE et par son schéma linéaire, une part significative des biais peut également provenir des restitutions IASI-SOFRID. L'estimation optimale utilisée dans l'inversion des profils d'ozone de IASI nécessite la combinaison des mesures (les radiances mesurées et leur matrice de covariance d'erreur) et d'une information a-priori (un profil d'ozone et sa matrice de covariance d'erreur).

Les profils a-priori sont nécessaires pour résoudre le problème inverse des restitutions atmosphériques car, rappelons-le, celui-ci est mal posé. La précision de la matrice de covariance et du profil a-priori influence donc les restitutions.

Jusqu'à présent le profil a-priori utilisé dans SOFRID pour la restitution des profils d'ozone IASI provient d'une climatologie globale. Il s'agit d'un profil 1D moyenné sur toutes les sondes d'ozone disponibles et toutes les données aéroportées de l'année 2008, complété par des données stratosphériques MLS. La matrice de covariance est calculée comme l'écart-type de ce jeu de données et une seule matrice est disponible pour tout le globe.

Le fait d'utiliser un seul profil a-priori global et constant dans le temps peut engendrer des biais dans certaines bandes de latitudes ou pendant certaines saisons. Par exemple, dans la bande tropicale (entre 30° S et 30° N) la tropopause est plus élevée que dans les autres latitudes et particulièrement durant l'été due à la présence de convection ou d'évènement particulier tel que l'ENSO. Pour réduire ces biais et améliorer les restitutions IASI, une méthode alternative de construction des profils a-priori d'ozone et des matrices de covariance associées a été testée, en utilisant l'analyse MLS-a (présentée dans le chapitre 5).

## 7.1 Introduction

Le chapitre 5 a montré que les biais de l'analyse IASIMLS-a apparaissent particulièrement dans les hautes latitudes, et sont moins présents dans les tropiques.

Une part de ces biais proviennent du modèle MOCAGE et en particulier du schéma linéaire utilisé. En effet le schéma linéaire CARIOLLE ne prend pas en compte les émissions de surface et induit donc des biais dans la couche limite (voir l'étude du chapitre 5 et du chapitre 6). Cependant, le modèle MOCAGE a été largement validé pour l'étude de composés atmosphériques [Geer et al., 2006, Bousserez et al., 2007], ainsi que pour l'assimilation d'espèces chimiques [Massart et al., 2009, El Amraoui et al., 2010]. Le schéma linéaire CARIOLLE a montré qu'il apportait des résultats satisfaisants sur les taux de production/destruction de l'ozone particulièrement dans la haute troposphère et la basse stratosphère [Cariolle and Teyssedre, 2007]. De plus, ces résultats sont d'autant plus satisfaisants lorsque le schéma CARIOLLE est combiné avec l'assimilation de données satellitaires (chapitre 5 et chapitre 6).

Les biais présents dans l'analyse IASIMLS-a ne proviennent donc pas seulement du modèle utilisé. En effet dans la section 6.5.1 du chapitre 6, il a été vu que l'analyse IASIMLS-a avait plus de biais que le modèle direct ou l'analyse MLS-a dans la couche limite. Une autre cause est donc responsable des biais présent dans l'analyse IASIMLS-a. Notamment, les erreurs peuvent provenir des restitutions IASI de niveau 2 réalisées avec le logiciel SOFRID.

Dans les laboratoires français, il existe trois différentes versions de niveau 2 pour les données ozone IASI développés dans les laboratoires suivant : le Laboratoire d'Aérodynamique (LA), le Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales et l'Université Libre de Bruxelles (LATMOS/ULB), et le Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA). Une différence entre tous ces produits est le calcul de l'a-priori et de la matrice de covariance, ainsi que les différents modèles de transfert radiatif utilisés [Keim et al., 2009, Boynard et al., 2009, Barret et al., 2011].

Le LA a développé l'algorithme de restitution SOFRID (présenté dans le chapitre 3). SOFRID est construit sur le modèle rapide de transfert radiatif RTTOV couplé à un algorithme 1D-Var. Le 1D-Var est basé sur la méthode d'estimation optimale [Rodgers, 2000] qui requiert un profil a-priori et la matrice de covariance d'erreur correspondante comme auxiliaire d'entrée. Le profil a-priori et la matrice de covariance associée sont calculés sur un ensemble de radiosondages mesurés en 2008 (base de données WUDC, SHADOZ) et des instruments installés à bord d'avion du programme MOZAIC [Thouret et al., 1998]. Les profils sont ensuite complétés par des données de MLS. Les profils a-priori et la matrice de covariance des produits IASI-SOFRID du LA ont été décrits dans le chapitre 3. Plusieurs études ont validé les restitutions IASI-SOFRID utilisant l'a-priori climatologique [Barret et al., 2011, Emili et al., 2014]. Cependant, cette climatologie ne possède pas de variations suivant les latitudes et suivant la hauteur de la tropopause. Il s'agit d'un seul profil 1D, la matrice de covariance associée est de dimension  $43 \times 43$ , et elle est utilisée pour tout le globe.

Le produit LATMOS/ULB utilise le logiciel FORLI-O3 (Fast Optimal Retrievals on Layers for IASI, [Hurtmans et al., 2012]). Les profils a-priori et la matrice de

covariance associée sont construits à partir de la base de données climatologiques de [McPeters et al., 2007]. Cette climatologie est une combinaison de données satellitaires de l'instrument *Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II* (SAGE II, depuis 1988), des données stratosphériques de MLS et de ballon-sondes. [Wespes et al., 2012] ont utilisé et validé les produits du LATMOS/ULB montrant la capacité de IASI à observer la pollution dans les hautes latitudes de l'hémisphère Nord.

Les produits du LISA sont basés sur le modèle de transfert radiatif KOPRA-FIT (Karlsruhe Optimised and Precise Radiative transfer Algorithm [Stiller et al., 2000]). Le profil a-priori utilisé dans la restitution vient tout comme le produit LATMOS/ULB des données climatologiques de [McPeters et al., 2007]. Ces restitutions ont été utilisées et validées dans l'article de [Dufour et al., 2010].

Ces trois produits ont été validés et comparés dans l'étude de [Dufour et al., 2012] qui a montré qu'ils avaient une qualité suffisante pour être utilisée dans des études géophysiques. La validation des produits IASI avec les sondes d'ozone a montré des biais dans l'UTLS aux tropiques de  $18 \pm 19$  % avec IASI-SOFRID,  $13 \pm 16$  % avec FORLI et  $24 \pm 11$  % avec KOPRA-FIT. Pour les moyennes latitudes, les biais sont inférieurs à 5 % sauf pour SOFRID où ils sont proches de 11 %.

Tous ces logiciels de restitutions utilisent une climatologie comme profil a-priori. Une climatologie d'ozone a une importance fondamentale puisqu'elle fournit des informations sur l'état moyen et sur la variabilité (covariance). Elle peut être utilisée soit comme a-priori dans les restitutions de données satellitaires, soit comme condition initiale pour des modèles CTM 3D. Plusieurs climatologies existent. [Mcpeters et al., 1997] ont calculé des profils d'ozone à partir de mesures ballon sondes pour fournir des restitutions satellitaires dérivées de climatologie mensuelle zonale pour la moyenne et la haute stratosphère. Depuis, plusieurs climatologies d'ozone troposphérique ont été développées pour la restitution de différents instruments à bord de satellites [Wellemeyer et al., 1997, Logan, 1999, Lamsal et al., 2004].

Le formalisme d'estimation optimale introduit par [Rodgers, 1976] explicite l'utilisation de profils a-priori ainsi que de sa covariance pour contraindre les sorties de restitutions [Coe, 2002]. Dans le but de retenir toute l'information, une représentation réaliste du profil a-priori est nécessaire.

Ce chapitre a donc pour objectif de vérifier si les biais présents sont bien causés par l'a-priori climatologique. Si cela est le cas, il faudra les réduire avec un profil a-priori plus informatif et plus précis. Il est essentiel de construire un profil a-priori et une matrice de covariance qui apportent des informations sur la dynamique ainsi que sur le positionnement de la tropopause. La colonne d'ozone dépend du positionnement de la tropopause avec des concentrations plus importantes lorsque la tropopause est basse, et moins importantes quand la tropopause est haute [Steinbrecht et al., 1998].

Afin d'obtenir une structure verticale cohérente avec la dynamique dans les profils a-priori et les matrices associées, l'analyse MLS-a est utilisée pour restituer les données IASI-SOFRID. Les mesures d'ozone MLS ont été assimilées dans MOCAGE dans l'objectif de décrire plus précisément les processus dynamiques dans la basse stratosphère. Plusieurs études ont validé l'analyse MLS [Massart et al., 2009, Emili et al., 2014] et ont montré l'intérêt d'utiliser cette analyse. L'apport d'information dans la stratosphère par les données MLS contribue à améliorer les profils verticaux

du modèle MOCAGE. En utilisant cette analyse dans le calcul de l'a-priori et de la matrice de covariance, l'information sur le profil vertical d'ozone stratosphérique et sur la tropopause au moment et à l'endroit de la restitution, est prise en compte. L'a-priori ainsi calculé sera nommé "a-priori dynamique" pour le différencier de l'a-priori climatologique nommé "REF".

Dans la section suivante les données utilisées comme référence dans la validation des nouvelles restitutions sont présentées (7.2). Suit la description des nouveaux profils a-priori ainsi que des nouvelles matrices de covariance (7.3). Pour terminer, une validation de la nouvelle version est effectuée en comparaison avec les sondes pour la période 2008 - 2009 (7.4) et la variabilité de l'ozone troposphérique lors d'un événement ENSO est examinée (7.5).

## 7.2 Les observations pour l'évaluation

### Ozonesondes

Les mesures d'ozone à partir de sondes sont utilisées pour valider les colonnes d'ozone troposphériques obtenues par les restitutions IASI-SOFRID. Cette validation inclut les profils d'ozone des sondes du Centre WOUDC. Deux types de sondes ont majoritairement été utilisées durant la période étudiée : les sondes ECC (Electrochemical Concentration Cell, [Komhyr, 1969]) et les sondes Bre (pour Brewer Mast type). Les sondes d'ozone fournissent des mesures in-situ de température, de pression, d'humidité et d'ozone pour différentes stations du monde. La majorité se situent dans les moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Les profils verticaux mesurés pour l'ozone atteignent 30 - 35 km d'altitude avec une résolution verticale d'environ 150 m. La précision des concentrations d'ozone mesurées avec les sondes d'ozone est d'environ 5 % [Deshler et al., 2008, Smit et al., 2007, Thompson et al., 2003].

Les sondes ont tout d'abord été utilisées dans cette étude pour une validation journalière des restitutions dynamiques afin de déterminer la précision des profils a-priori dynamique et de déterminer les paramétrages des matrices de covariance dynamique. Cette étape a été effectuée pour la journée du 1<sup>er</sup> décembre 2008.

Les caractéristiques des six sondes disponibles sont résumées dans le tableau 7.1. La latitude, longitude et altitude de chaque sonde y sont indiquées, de même que leur localisation et le code de la sonde. Seules quatre sondes seront plus particulièrement étudiées dans la suite (section 7.3) pour résumer les résultats. Ces quatre sondes sont les sondes Svalbard, Suisse, Suriname et Nouvelle-Zélande, représentatives des conditions en différentes latitudes et saisons.

Pour la validation de la section 7.4, toutes les sondes disponibles globalement ont été utilisées.

### La méthode résiduelle OMI/MLS

Les données d'ozone des instruments AURA MLS et OMI (voir section 3.2.1) sont utilisées pour calculer des données mensuelles de colonne d'ozone troposphérique (TCO).

Nom de la station	Ville	Code	Latitude	Longitude	Altitude (en m)
Svaldbard	Ny-Alesund	089ECC	78.93° N	11.95° E	0
Allemagne	Hohenpeissenberg	099Bre	47.8° N	11.0° E	770
Suisse	Saint-Sulpice	156ECC	46.49° N	6.57° E	372
Suriname	Paramaribo	435ECC	5.81° N	55.21° W	2
Malaisie	Kuala Lumpur International Airport	443ECC	2.73° N	101.7° E	20
Nouvelle-Zelande	Lauder	256ECC	45.04° S	169.68° E	361

Table 7.1: Tableau récapitulatif des six sondes d’ozone disponibles le 1<sup>er</sup> décembre 2008 sur le globe terrestre. Pour chaque sonde, il est indiqué le pays de la station, la ville, le code de la sonde, les coordonnées géographiques et l’altitude.

La colonne troposphérique OMI-MLS est obtenue par la méthode dite résiduelle. La TCO OMI-MLS est déterminée en soustrayant les profils d’ozone verticaux MLS aux colonnes totales d’ozone de OMI. Le niveau de la tropopause provient du Centre National pour la Prédiction de l’Environnement (NCEP, National Center for Environmental Prediction) qui utilise la définition du gradient de température de la WMO (World Meteorological Organisation). Les données OMI-MLS ont été obtenues à partir du site [https://acd-ext.gsfc.nasa.gov/Data\\_services/cloud\\_slice/](https://acd-ext.gsfc.nasa.gov/Data_services/cloud_slice/).

Depuis les années 1990, la méthode d’ozone troposphérique résiduelle (TOR pour *Tropospheric Ozone Residual*) est utilisée classiquement pour calculer la différence entre la colonne totale d’ozone du sondeur TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) avec la colonne stratosphérique d’ozone de plusieurs instruments satellitaires tel que SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) [Fishman et al., 1990] et des mesures de MLS [Chandra, 2003]. Alors que les profils d’ozone stratosphérique SAGE ne sont fournis qu’une fois par mois, l’instrument OMI donne des colonnes totales d’ozone presque simultanément avec les données stratosphériques de MLS.

Le principal avantage des données OMI-MLS par rapport aux autres mesures satellitaires des méthodes TOR, est que les données sont fournies sur une base journalière. Plusieurs études ont utilisé les colonnes troposphériques OMI-MLS pour suivre la variabilité de l’ozone, même si certaines données journalières ont montré des limites dues aussi bien aux restitutions des instruments qu’à la technique résiduelle [Ziemke et al., 2006].

### 7.3 Vers la mise en place des a-priori et matrices de covariance d’erreur dynamiques

L’a-priori climatologique est construit à partir d’une moyenne globale des profils d’ozone des ballons sondes et de mesures aéroportées. L’a-priori n’a donc pas de variabilité en fonction des latitudes, des longitudes et de la dynamique atmo-

sphérique. L'utilisation d'un modèle de chimie-transport dans le calcul des profils a-priori et des matrices de covariance permet d'apporter l'information de la dynamique atmosphérique journalière.

Dans cette section, les détails sur le calcul de l'a-priori dynamique et sur sa matrice de covariance à partir de MLS-a ainsi que la validation par comparaison avec les sondages sont présentés.

Dans un premier temps, les calculs de l'a-priori dynamique et de la matrice de covariance dynamique sont présentés seulement pour le cas de la sonde Svalbard afin d'observer des modifications dans les restitutions biaisées des hautes latitudes de l'hémisphère Nord. La procédure de calcul de l'a-priori et de la matrice de covariance est identique aux autres sondes avec pour seule différence l'altitude de la tropopause. La station d'observation utilisée pour présenter le calcul de la matrice dynamique se trouve à Ny-Alesund dans l'archipel du Svalbard. Cet archipel est situé dans l'océan Arctique, à mi-chemin entre la Norvège et le Pôle Nord.

Après avoir détaillé les calculs de la matrice et de l'a-priori, les profils restitués et les profils a-priori aux géolocalisations de chaque sonde (Svalbard, Suisse, Suriname et Nouvelle-Zélande) sont présentés dans trois différentes versions de restitutions comprenant les versions référence et dynamique. Les versions sont comparées entre elles et validées par comparaison avec le profil de la sonde d'ozone.

### 7.3.1 Détermination de l'a-priori dynamique

Un premier profil a-priori a été calculé en utilisant les sorties journalières de la simulation modèle direct du chapitre 5. Lors de la validation contre les sondes et en comparant par rapport à la version REF, l'a-priori MOCAGE direct n'améliorait que légèrement la restitution des profils sur la verticale due au manque d'information dans la stratosphère. L'utilisation de la simulation MLS-a dans le calcul du profil a-priori et de la matrice de covariance a alors montré une nette amélioration par rapport au modèle direct (figures non montrées).

Le profil a-priori dynamique est alors construit à partir de l'analyse MLS-a. Contrairement à l'a-priori REF, dont seul un profil est disponible pour tout le globe, le profil a-priori dynamique est construit toutes les 6h (à 00h, 06h, 12h et 18h) et il est moyenné spatialement sur des rectangles de dimension  $10^\circ$  de latitude par  $20^\circ$  de longitude. Il s'agit d'un choix technique. Cette résolution spatiale grossière par rapport à la grille d'origine de MOCAGE ( $2^\circ$  par  $2^\circ$ ) permet d'intégrer plus facilement les profils a-priori et matrices associées dans SOFRID (en termes d'espace occupé par les fichiers d'entrées).

### 7.3.2 Détermination de la matrice de covariance d'erreur d'ébauche dynamique

La matrice de covariance est caractérisée par le champ de variance (diagonale de la matrice) et par l'extension spatiale des fonctions de corrélation  $\rho(z_1, z_2)$  souvent diagnostiquée par la longueur de portée moyenne  $\mathbf{L}$  définie en 2D (dépendant de la latitude et de la pression).



### Matrices et fonctions de covariance

La matrice de covariance est nécessaire dans l'algorithme de restitution.

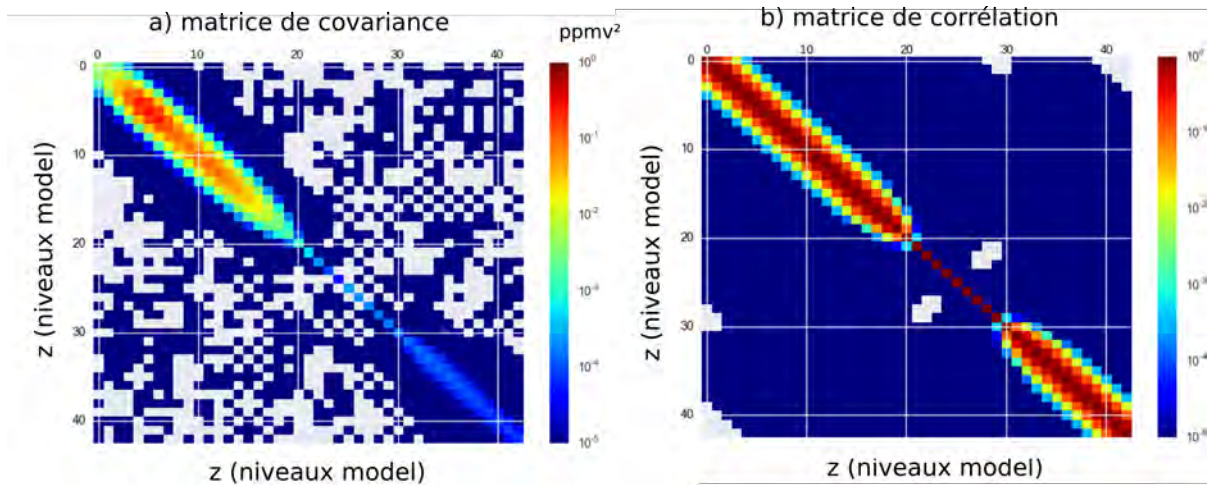


Figure 7.1: Représentation de la matrice de covariance (a) et de la matrice de corrélation (b) pour la sonde Svalbard.

La variance (diagonale de la matrice de covariance, voir un exemple dans la figure 7.1a) en un point de grille quantifie la dispersion statistique de l'erreur et donc l'amplitude de l'incertitude (en valeur absolue). L'écart-type, correspond à la racine carrée de la variance et correspond à une amplitude moyenne de l'erreur.

La matrice de covariance  $\mathbf{C}$  calculée pour la version dynamique a pour formule :

$$\mathbf{C} = \rho_{i,j} \sigma_i \sigma_j \quad (7.1)$$

avec  $\rho_{i,j}$  le coefficient (ou matrice) de corrélation entre les niveaux  $i$  et  $j$  correspondant aux niveaux du modèle et  $\sigma$  l'écart type.

$\sigma$  dépend aussi du niveau de la tropopause et l'on a fixé une valeur dans la troposphère de  $\sigma = 30\% \overline{O_3}$  et de  $\sigma = 10\% \overline{O_3}$  dans la stratosphère, où  $\overline{O_3}$  est la concentration du profil a-priori. Le niveau de la tropopause a été déterminé selon la définition du WMO du gradient thermique sur les sorties du Modèle-Direct (voir la section 1.2).

Plusieurs essais ont été effectués pour déterminer la valeur de l'écart-type dans la colonne d'ozone allant de 15 %, 30 % et 50 %. Plus l'écart-type est grand, plus la restitution s'éloigne du profil de la sonde (figures non montrées). En prenant un écart-type variable sur la verticale de 10 % dans la stratosphère et de 30 % dans la troposphère, la restitution est au plus près de chaque sonde étudiée aussi bien dans la troposphère qu'à la tropopause. Ces valeurs ont été estimées sur la base des validations effectuées dans le chapitre 5.

L'information d'extension spatiale des fonctions de covariance est contenue dans les corrélations. La fonction de corrélation (figure 7.1b) est calculée suivant l'expression analytique anisotrope hétérogène, décrite dans l'article de [Weaver and Mirouze,

2013]. Le caractère anisotrope d'un milieu tel que l'atmosphère résulte de la stratification de l'atmosphère, et les hétérogénéités du milieu se traduisent au niveau du tenseur  $L^2$  par des discontinuités au passage d'une couche à une autre (telle que de la stratosphère vers la troposphère).

Les profils d'ozone de MLS-a à 60 niveaux ont été interpolés sur les 43 niveaux de SOFRID.

Soit  $i$  et  $j$  les 43 niveaux du modèle SOFRID, la fonction de corrélation  $\rho$  est alors égale à :

$$\rho_{i,j} = \beta_{i,j} e^{-\frac{r_{i,j}^2}{2}} \quad (7.2)$$

avec

$$\beta_{i,j} = |L[j]^2|^{1/4} \cdot |L[i]^2|^{1/4} \cdot \left| \frac{L[j]^2 + L[i]^2}{2} \right|^{-1/2} \quad (7.3)$$

$$r_{i,j} = \sqrt{\frac{2(i-j)^2}{L[j]^2 + L[i]^2}} \quad (7.4)$$

La matrice de covariance ainsi définie est symétrique et définie positive.

### ***La longueur de corrélation***

La matrice de covariance dépend de la longueur de corrélation (notée  $L$  dans les équations précédentes). La longueur de corrélation (ou également dite longueur de portée) caractérise l'influence d'une erreur d'un point sur les autres points. Cela traduit notamment la distribution verticale de l'ozone, où par exemple l'ozone dans la stratosphère n'a que peu d'interaction avec l'ozone dans la troposphère, et inversement.

Ces deux couches atmosphériques sont assez indépendantes l'une de l'autre (cf. section 5.2.2). De plus, en ayant testé la longueur de corrélation à  $L=1$  pour les restitutions (non montré), il a pu être observé des biais par rapport aux sondes à la tropopause, de même qu'en utilisant n'importe quelle valeur constante pour  $L$ . On fait alors l'hypothèse d'une très faible corrélation d'erreur entre les colonnes troposphérique et stratosphérique. Il faut donc, par la longueur de corrélation, imposer une séparation entre la stratosphère et la troposphère. C'est pourquoi la longueur de corrélation ( $L$ ) choisie pour cette étude a une corrélation maximale dans la troposphère et la stratosphère et une corrélation minimale au niveau de la tropopause. Afin que cette séparation ne soit pas brutale, la transition est progressive entre  $L$  maximale et  $L$  minimale. Les valeurs maximales et minimales de  $L$  ont été définies suite à plusieurs essais sur la forme et sur les valeurs de la matrice de corrélation en fonction des niveaux du modèle. La matrice de corrélation doit marquer une indépendance entre les niveaux de la haute troposphère avec les niveaux de la basse stratosphère. La tropopause a été calculée comme pour les écart-types de la matrice de covariance définie précédemment. La figure 7.2 montre un exemple de longueur de corrélation (cas de la sonde Svalbard).

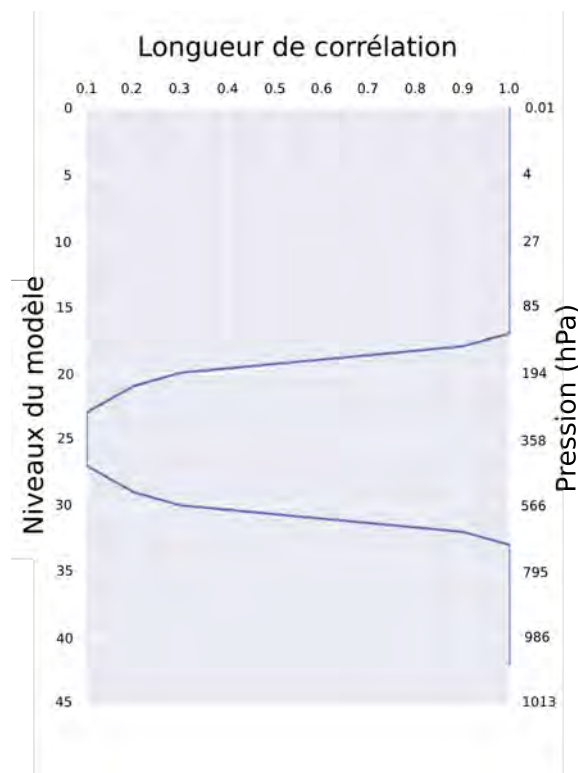


Figure 7.2: Représentation de la longueur de corrélation choisie pour la sonde Svalbard.

### 7.3.3 Validation des restitutions dynamiques contre les quatre sondes : Svalbard, Suisse, Suriname, et Nouvelle-Zélande

Trois versions de IASI-SOFRID ont été produites : la version REF qui correspond aux restitutions avec a-priori REF et matrice REF; la version INT pour “Intermédiaire” puisque cette version possède l’a-priori dynamique (calculé à partir de MLS-a) et la matrice REF; et enfin la version DYN pour “dynamique” avec l’a-priori et la matrice calculés à partir de l’analyse MLS-a. Le tableau 7.2 récapitule ces versions.

Version	a-priori	matrice
REF	REF	REF
INT	MLS-a	REF
DYN	MLS-a	MLS-a

Table 7.2: Résumé des versions de produits IASI-SOFRID et de leur a-priori et matrice de covariance respectifs.

Dans cette section, les restitutions INT et DYN sont comparées aux restitutions REF et évaluées par rapport aux sondes. Seuls les pixels de restitution IASI-SOFRID dans un rayon de  $1^\circ$  de grille (environ 100 km à l’équateur et 50 km à  $60^\circ$  N) autour de la sonde ont été utilisés pour ces validations. L’analyse est effectuée pour la journée du 1<sup>er</sup> décembre 2008. Cette première validation permet

d'estimer si les deux versions (INT et DYN) reproduisent des profils d'ozone plus proches à ceux des sondes.

Une fois les calculs de l'a-priori et de la matrice effectués, les restitutions de IASI avec SOFRID sont effectuées. Les restitutions pour les versions INT et DYN sont calculées pour un zonage de  $10^\circ$  de latitude par  $20^\circ$  de longitude centrées autour des sondes.

Quatre stations de sondages sont considérées : l'archipel du Svalbard, la Suisse, le Suriname et la Nouvelle-Zélande. La localisation de ces quatre stations permet d'obtenir une répartition terrestre homogène. Ces quatre sondes permettent d'évaluer si les versions INT et DYN améliorent les restitutions au niveau de la tropopause (qui est plus basse aux hautes latitudes qu'aux tropiques), dans la stratosphère et dans la troposphère suivant la localisation géographique.

Pour les quatre validations, les figures associées (7.3 à 7.6) à chaque sonde montrent de la gauche vers la droite : les profils a-priori, les profils restitués et les différences entre le profil mesuré à celui restitué (en %) après lissage avec AVK. Les comparaisons lissées entre les données in situ et les données restituées de IASI permettent d'évaluer la précision des restitutions indépendamment de la qualité de l'a-priori des données d'ozone restituées. Dans chaque figure, la sonde est représentée en bleu, la version INT est représentée en vert, la version DYN en rouge et la version REF en noir.

### *L'archipel du Svalbard*

La figure 7.3 montre la validation et la comparaison entre les trois versions : des profils a-priori, des restitutions et des restitutions lissées par averaging kernels par rapport à la sonde Svalbard. Pour cette station l'objectif est d'évaluer le comportement des versions de restitutions pour les hautes latitudes.

Selon le profil vertical de la sonde, la tropopause se situe aux alentours de 300 hPa.

Alors que le profil a-priori REF suit le profil de la sonde dans la troposphère, le profil a-priori MLS-a s'en éloigne et inversement dans la stratosphère où le profil a-priori MLS suit parfaitement la sonde. Les caractéristiques des profils a-priori se répercutent dans les restitutions. Ainsi, la version REF suit la sonde dans la basse troposphère mais dès 500 hPa elle s'en éloigne. La version INT montre que le profil a-priori joue un rôle important dans la restitution. Sur toute la verticale, la version INT est presque identique à la version DYN et ces deux versions sont proches du profil de la sonde.

En regardant les courbes restituées et lissées avec l'AVK, la figure 7.3c permet de visualiser les observations sans influence de données supplémentaires utilisées dans SOFRID pour effectuer les restitutions. Dans ce cas, nous observons que la matrice de covariance influence fortement les restitutions. Au niveau de la tropopause, la matrice de covariance d'ébauche REF apporte environ 30 % d'erreur à la version REF alors qu'avec la version DYN, elle n'a seulement que 5 % d'erreur grâce à la matrice de covariance d'ébauche construite à partir de MLS-a. La version INT

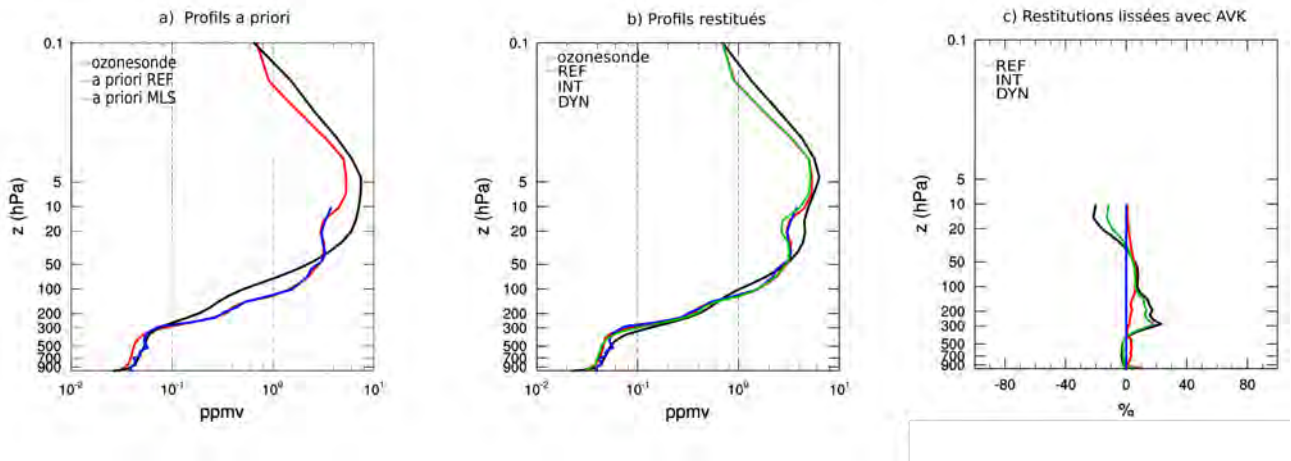


Figure 7.3: Profils entre 1015 hPa et 0.1 hPa de la sonde d’ozone situé dans l’archipel du Svalbard (en bleu) au 1<sup>er</sup> décembre 2008. A gauche les profils a-priori REF (en noir) et MLS-a (en rouge). Au milieu, les profils restitués de la version REF (en noir), de la version INT (en vert) et de la version DYN (en rouge). A droite, les différences entre les profils mesurés aux profils restitués et lissés avec leur averaging Kernels respectifs.

présente une amélioration, visible à la tropopause et dans la haute stratosphère, de seulement quelques pourcents sur la verticale due au profil a-priori MLS-a. L’apport d’information dynamique est donc important dans le profil a-priori et dans la matrice de covariance pour les hautes latitudes.

### La Suisse

Deux stations de sondages ont été sélectionnées en Europe. Les résultats pour la station en Suisse sont présentés.

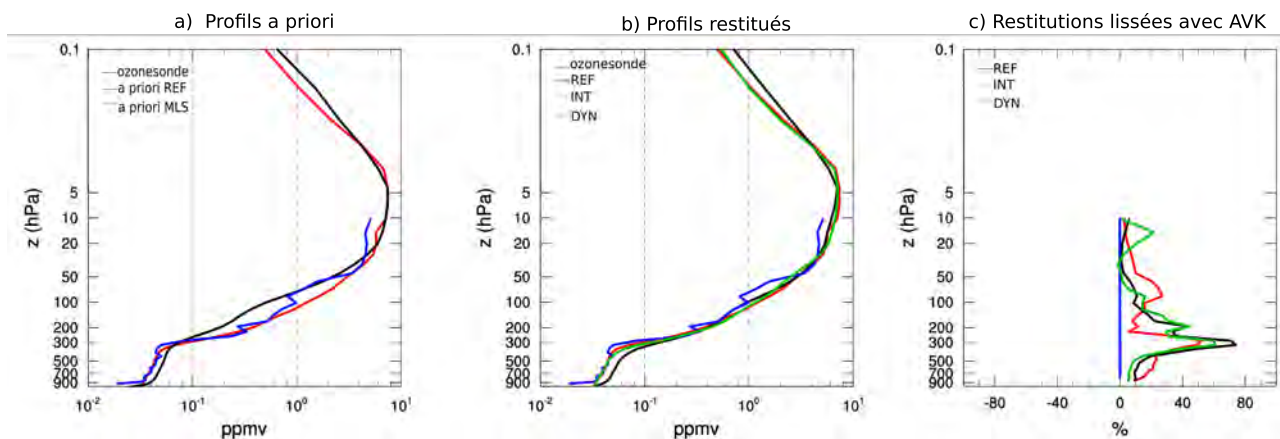


Figure 7.4: Idem que la figure 7.3 mais pour la sonde d’ozone située en Suisse (en bleu).

Le profil d’ozone de la sonde située en Suisse a une concentration qui passe de 0.06 ppmv à 6 ppmv du sol à 10 hPa. La transition entre les faibles valeurs de la troposphère et des valeurs élevées de la stratosphère est située aux environs de 300 hPa correspondant au niveau de la tropopause.

Contrairement aux hautes latitudes, l'a-priori MLS-a est similaire au profil d'ozone de la sonde sur pratiquement toute la verticale et particulièrement dans la troposphère et à la tropopause (figure 7.4a). De 150 hPa à 10 hPa, des variations apparaissent dans la sonde diminuant les concentrations d'ozone à certaines altitudes. L'a-priori REF a un profil différent de celui de la sonde sur toute la verticale avec une sur-estimation des concentrations d'ozone dans la troposphère et une sous-estimation des concentrations dans la stratosphère.

Les profils restitués montrent l'influence et l'importance d'utiliser un profil a-priori précis sur toute la verticale. Avec la version REF, le profil restitué surestime les concentrations d'ozone dans la troposphère de 20 ppbv. Dans la stratosphère (à partir de 200 hPa), la matrice de covariance tend à corriger le profil a-priori avec une restitution proche du profil de la sonde (figure 7.4b).

Les versions INT et DYN ont des profils pratiquement identiques à celui de la sonde sur toute la verticale, avec quelques différences en particulier au niveau de la tropopause où la version DYN a des valeurs d'ozone plus proches de la sonde que la version INT.

En utilisant le lissage avec l'averaging kernel, une amélioration de la restitution au niveau de la tropopause est observée avec la version DYN (figure 7.4c). Cependant, dans la troposphère et dans la stratosphère, la version INT a des erreurs les plus faibles (erreurs inférieures à 5 % alors qu'elles sont comprises entre 5 % et 10 % avec la version DYN). Bien que des biais apparaissent dans la stratosphère, l'utilisation de l'a-priori et de la matrice de covariance d'ébauche de MLS-a améliore en moyenne et sur la verticale les restitutions de IASI-SOFRID comparées à une sonde située dans les moyennes latitudes.

### *Le Suriname*

La figure 7.5 présente les restitutions et les profils a-priori pour la station d'ozone située au Suriname (435ECC).

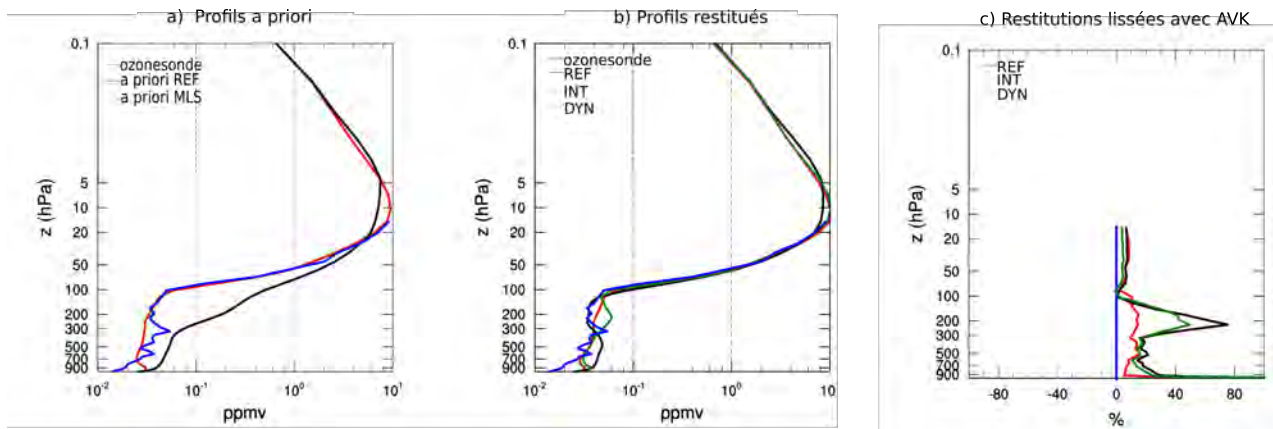


Figure 7.5: Idem que la figure 7.3 mais pour la sonde d'ozone située au Suriname (en bleu).

Cette sonde située dans les tropiques et proche de l'équateur donne un premier aperçu des restitutions avec les nouvelles versions de SOFRID pour un profil d'ozone situé dans les tropiques.

Le 1<sup>er</sup> décembre 2008, la tropopause était située vers 100 hPa. Le profil a-priori REF ne permet pas de reproduire ce profil d’ozone observé avec la sonde (figure 7.5a). L’augmentation de la concentration d’ozone à partir de la tropopause n’est pas situé à 100 hPa comme pour la sonde mais vers 300 hPa. À la tropopause, il y a donc une surestimation d’ozone d’environ 0.3 ppmv avec le profil a-priori REF.

L’importante différence entre la sonde et le profil a-priori REF s’explique par l’utilisation de moyennes globales dans le calcul du profil a-priori. Le profil a-priori REF n’a pas de profil spécifique propre à chaque latitude. Il n’y a donc qu’un seul niveau de tropopause qui est identifié avec le profil a-priori REF. Etant donné que la plupart des sondes WUDC et SHADOZ se situent dans les moyennes latitudes de l’hémisphère Nord, le niveau de tropopause retenu dans l’a-priori REF est situé vers 300 hPa (comme cela a pu être observé avec les sondes situées en Europe et au Svalbard).

Le profil a-priori MLS-a reproduit très bien le profil d’ozone de la sonde avec quelques différences dans la couche limite et vers 300 hPa. Ces différences de profils dans la couche limite entre le profil a-priori MLS-a et la sonde peuvent être dues d’une part au manque de précision de MOCAGE et en particulier du schéma linéaire CARIOLLE et d’autre part à la faible sensibilité de l’instrument MLS dans la basse troposphère.

La figure des restitutions (figure 7.5b) montre que la matrice de covariance d’ébauche REF corrige la restitution REF en permettant d’obtenir un profil sur la verticale proche de celle de la sonde. Il apparaît d’ailleurs que la version REF est la plus proche de la sonde comparée aux versions INT et DYN particulièrement entre 300 hPa et 100 hPa. La restitution REF a donc apporté une importante correction par rapport au profil a-priori.

Cependant, en regardant la figure des restitutions lissées avec AVK (figure 7.5c), un biais est bien présent avec la version REF d’environ 80 % autour de 200 hPa par rapport à la sonde. Ce biais n’atteint seulement que 40 % avec INT et seulement 10 % avec DYN. Sur la verticale, seule la version DYN possède un pourcentage d’erreur inférieur à 10 % par rapport à la sonde. Il y a donc également dans les tropiques une nette amélioration en utilisant l’a-priori MLS-a et la matrice de covariance d’ébauche MLS-a.

### ***La Nouvelle-Zélande***

La dernière sonde utilisée pour cette validation de la version DYN est la sonde située en Nouvelle-Zélande (figure 7.6). Le profil de la sonde montre une tropopause située aux environs de 300 hPa. Les profils a-priori REF et MLS-a semblent avoir une tropopause correspondante (figure 7.6a).

Dans la troposphère, le profil a-priori de MLS-a est plus proche des concentrations de la sonde que l’a-priori REF. En comparant les profils restitués et le profil de la sonde (figure 7.6b), le profil a-priori MLS-a apporte une légère amélioration aussi bien dans la version INT que dans la version DYN. L’information dynamique et stratosphérique apportée par MOCAGE et par les données MLS semble être nécessaire pour reproduire les concentrations d’ozone troposphérique et stratosphérique.



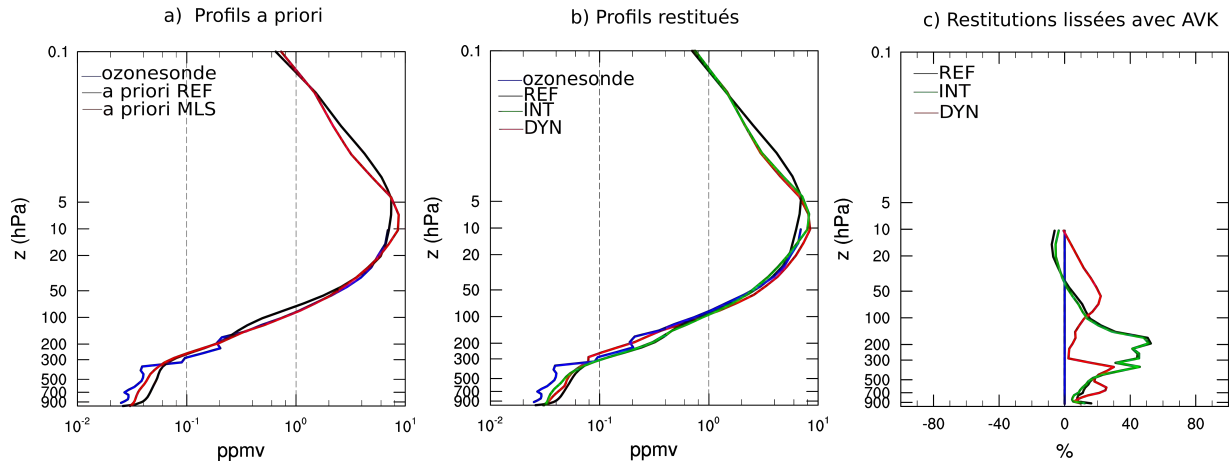


Figure 7.6: Idem que la figure 7.3 mais pour la sonde située en Nouvelle-Zélande.

Cependant, la version INT est plus en accord avec le profil de la sonde que la version DYN dans la troposphère. La matrice REF apporte donc plus d'informations là où le modèle MOCAGE est biaisé. Rappelons, en effet, que la matrice REF est basée sur les profils de radiosondages faiblement biaisés dans la couche limite. Les restitutions lissées avec l'AVK (figure 7.6c) donnent des informations plus précises sur la verticale pour les deux nouvelles versions. En terme de pourcentage, l'a-priori calculé à partir de MLS-a n'apporte quasiment aucune amélioration supplémentaire par rapport à la version REF sur toute la verticale. En utilisant la matrice de covariance MLS-a d'importantes améliorations sont visibles au niveau de la tropopause (vers 300 hPa). La différence en pourcentage par rapport au sondage passe de 40 % avec la version REF contre 2 % avec la version DYN. Cependant en ayant diminué la différence relative au niveau de la tropopause, elle augmente autour de 700 hPa, probablement due à la séparation entre la troposphère libre et la couche limite qui n'a pas été prise en compte dans la matrice. De même, une augmentation des différences relatives de 10 % apparaît avec la version DYN par rapport à la version REF autour de 50 hPa.

### *Conclusion de la première validation*

En ayant comparé les nouvelles versions (INT et DYN) avec les profils de sondes d'ozone et par rapport à la version REF, une première conclusion se dégage. Bien que le profil a-priori MLS-a apporte déjà une amélioration notamment à la tropopause, l'utilisation de sa matrice de covariance apporte de nettes améliorations sur toute la verticale. La prise en compte du niveau de la tropopause dans la matrice de covariance MLS-a ainsi que d'une longueur de corrélation variant entre 0.1 et 1, des données stratosphériques MLS et de l'apport dynamique du modèle semble être significatif pour réduire les biais des restitutions IASI qui étaient présents auparavant. Cette intercomparaison a donc montré que la version DYN apportait globalement des améliorations sur la verticale. Seule cette version sera donc utilisée dans la suite de ce chapitre.

Bien que cette première validation soit satisfaisante pour la version DYN, elle n'a été effectuée que pour le cas d'une journée et pour un nombre réduit de stations.



Pour obtenir une validation plus robuste de la version DYN il faut donc effectuer une validation sur une plus longue période.

## 7.4 Validation globale avec les sondes sur une période de deux ans

Les AVK n'étant pas considérés dans les sections suivantes, ces dernières se placent dans un contexte d'évaluation des restitutions pour des applications, qui à la différence de l'assimilation, n'utilisent pas le lissage par AVK (comme par exemple dans [Wespes et al., 2012]). Afin de poursuivre la validation de la version DYN, une validation globale sur 2 ans (de 2008 à 2009) a été effectuée à partir du jeu de données global WOUDC 2008 - 2009. Environ 1500 sondes ont été utilisées durant ces deux années de validation.

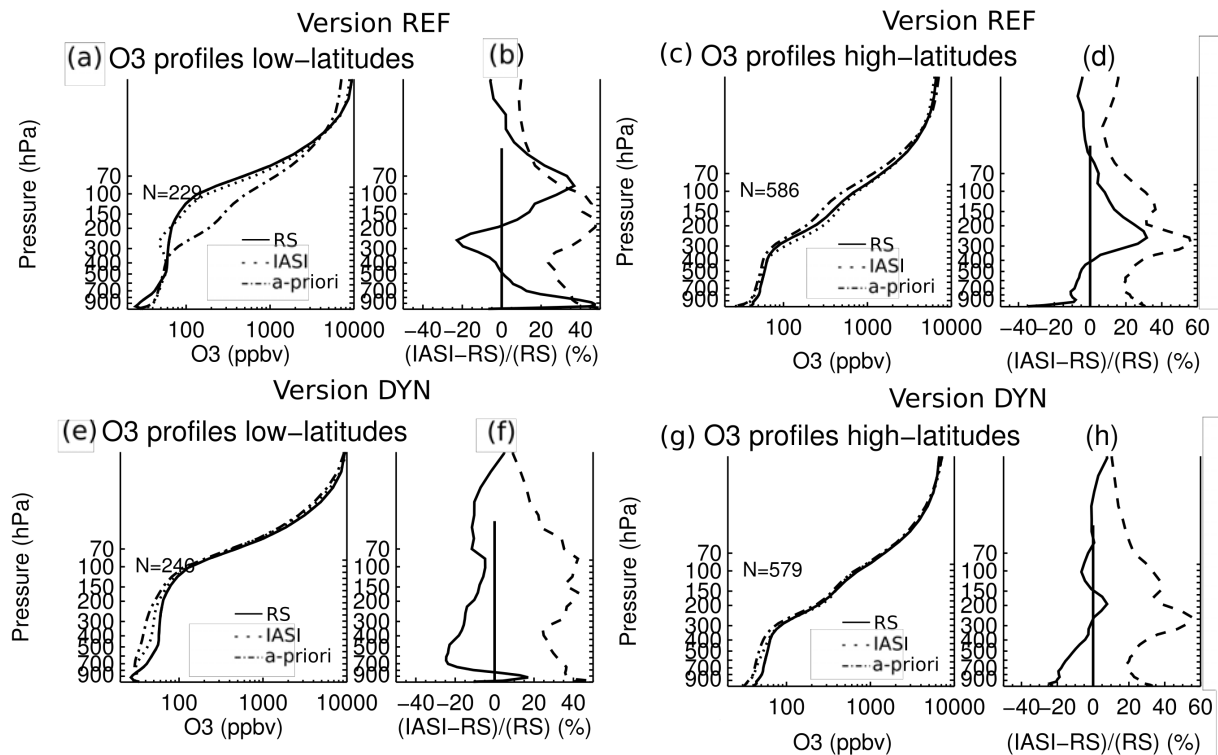


Figure 7.7: Profils d'ozone entre 1015 hPa et 0.1 hPa moyennés sur 2008 et 2009 pour les hautes latitudes ( $30^\circ \text{ N} - 90^\circ \text{ N}$  ainsi que  $30^\circ \text{ S} - 90^\circ \text{ S}$ ) à droite, et les basses latitudes ( $30^\circ \text{ S} - 30^\circ \text{ N}$ ) à gauche, de la version REF (en haut) et de la version DYN (en bas). Pour chaque cas : Les profils des radiosondages, de la restitution IASI et de l'a-priori sont représentés dans les sous-figures (a),(c),(e) et (g); Les biais en pourcentage entre les restitutions et les radiosondages sont tracés en trait plein et les écarts-types en pointillés dans les sous-figures (b),(d),(f) et (h). Le nombre de sonde N utilisé dans les restitutions est indiqué sur les figures.

La figure 7.7 représente, pour la version REF et la version DYN, les profils d'ozone restitués dans les hautes latitudes et les basses latitudes. Rappelons que l'a-priori REF est identique pour toutes les latitudes. Il y a donc, comme cela a été

constaté lors de la validation sur une journée, une importante différence d'environ 100 ppbv au niveau de la tropopause entre les sondes et l'a-priori, particulièrement marqué pour les tropiques. Cette différence en concentration d'ozone au niveau de la tropopause se répercute sur les restitutions de la version REF. Au contraire, l'a-priori MOCAGE ainsi que la restitution DYN se rapprochent des sondes d'ozone aussi bien dans les basses latitudes que dans les hautes latitudes sur toute la verticale en moyenne. Cette amélioration du profil a-priori et donc de la restitution se traduit par une réduction des biais entre les restitutions IASI et les radiosondages. En effet, les biais restent inférieurs à 20 % pour les deux bandes de latitudes et diminuent dans la stratosphère (inférieur à 10 %). Alors que pour la version REF, les biais sont de 40 % dans la couche limite et atteignent jusqu'à 20 à 30 % à la tropopause. Pour la version INT (non-montré) les mêmes oscillations que la version REF, avec une amplitude plus faible, sont observées sur la verticale.

Il y a donc un fort impact sur la verticale avec l'a-priori dynamique mais également et surtout avec la matrice de covariance dynamique. Le résultat confirme bien l'apport d'une tropopause dynamique pour les restitutions IASI-SOFRID, et donc que la précision de l'a-priori et de sa matrice de covariance a une grande importance dans la précision des restitutions d'ozone des données IASI.

Afin de mieux visualiser les résultats entre les versions REF et DYN par couches partielles et sur chaque hémisphère, la figure 7.8 montre les histogrammes des biais (en %) des couches troposphérique (340 hPa - 1015 hPa), UTLS (130 hPa - 340 hPa) et basse troposphère (680 hPa - 1015 hPa).

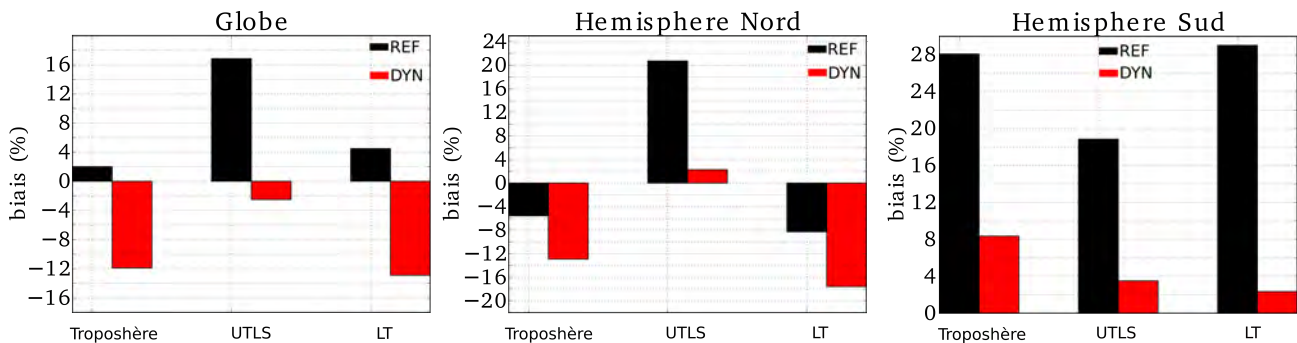


Figure 7.8: Validation contre les radiosondages sur la période 2008 - 2009 en global (à gauche), de l'hémisphère Nord (30° N - 90° N, au milieu) et de l'hémisphère Sud (30° S - 90° S, à droite) pour la version REF (en noir) et DYN (en rouge) des colonnes partielles troposphérique (340 hPa - 1015 hPa), de l'UTLS (130 hPa - 340 hPa) et de la basse troposphère (680 hPa - 1015 hPa).

Ces histogrammes montrent que la version DYN apporte de considérables améliorations au niveau de l'UTLS réduisant les biais par rapport à la version REF d'environ 15 % dans l'hémisphère Sud et de 18 % dans l'hémisphère Nord. La variation de la tropopause dans la matrice de covariance a donc considérablement amélioré les restitutions IASI-SOFRID.

Cependant, alors que les biais sont diminués d'environ 24 % dans la basse troposphère pour l'hémisphère Sud, ils augmentent de 8 % dans l'hémisphère Nord. Il

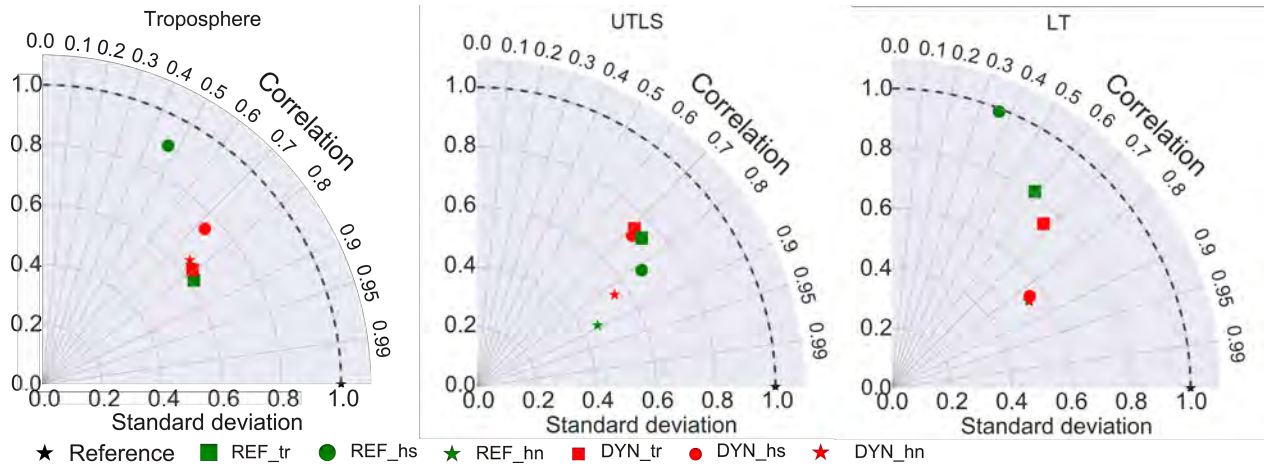


Figure 7.9: Diagramme de Taylor pour les restitutions REF et DYN dans la colonne troposphérique (340 hPa - 1015 hPa), l’UTLS (“UpperTroposphere/Lower Stratosphere”, 130 hPa - 340 hPa) et la basse troposphère (LT pour “Lower Troposphere”, 680 hPa - 1015 hPa) sur 2008 à 2009. Pour chaque diagramme, la version REF est représentée en vert et la version DYN en rouge. La validation s’effectue par bande de latitude : tropiques (tr, 30° S - 30° N) en carré, Hémisphère Sud (hs, 30° S - 90° S) en rond, et Hémisphère Nord (hn, 30° N - 90° N) en étoile.

est probable que les émissions de surfaces étant plus importantes dans l’hémisphère Nord que dans l’hémisphère Sud, le schéma linéaire représente plus difficilement les concentrations d’ozone dans la couche limite de l’hémisphère Nord apportant plus de biais. Cette différence de biais s’observe également pour la troposphère, dont les biais diminuent de 20 % dans l’hémisphère Sud et augmentent de 8 % dans l’hémisphère Nord. Cette répartition des biais suivant les couches partielles s’observe également dans les tropiques (figure 7.8 en global).

Globalement et sur la verticale, les améliorations apportées par la version DYN s’observent principalement au niveau de la tropopause.

En analysant la variabilité (corrélation et écart-type) avec le diagramme de Taylor de la figure 7.9, une meilleure variabilité est observée en moyenne avec la version DYN, plutôt qu’avec la version REF. La variabilité dans l’hémisphère Nord entre les deux versions est assez proche pour chaque couche partielle atmosphérique alors que pour l’hémisphère Sud les améliorations sont plus importantes. Par exemple dans la basse troposphère, la corrélation dans l’hémisphère Sud est seulement de 0.4 avec REF contre 0.85 avec DYN. Cependant, alors que les biais étaient meilleurs dans l’UTLS avec la version DYN qu’avec la version REF, la corrélation avec les sondes est au contraire meilleure avec REF dans l’UTLS que DYN et inversement dans la basse troposphère.

Concernant les corrélations et écart-types, il est assez difficile de conclure pour une version plutôt que pour l’autre. C’est pourquoi et pour compléter la validation sur deux ans, une étude statistique a été effectuée par comparaison avec les sondes WOUDC. La figure 7.10 montre les statistiques obtenues par colonnes partielles de la troposphère (entre le sol et 340 hPa) et de la basse troposphère (entre le sol et

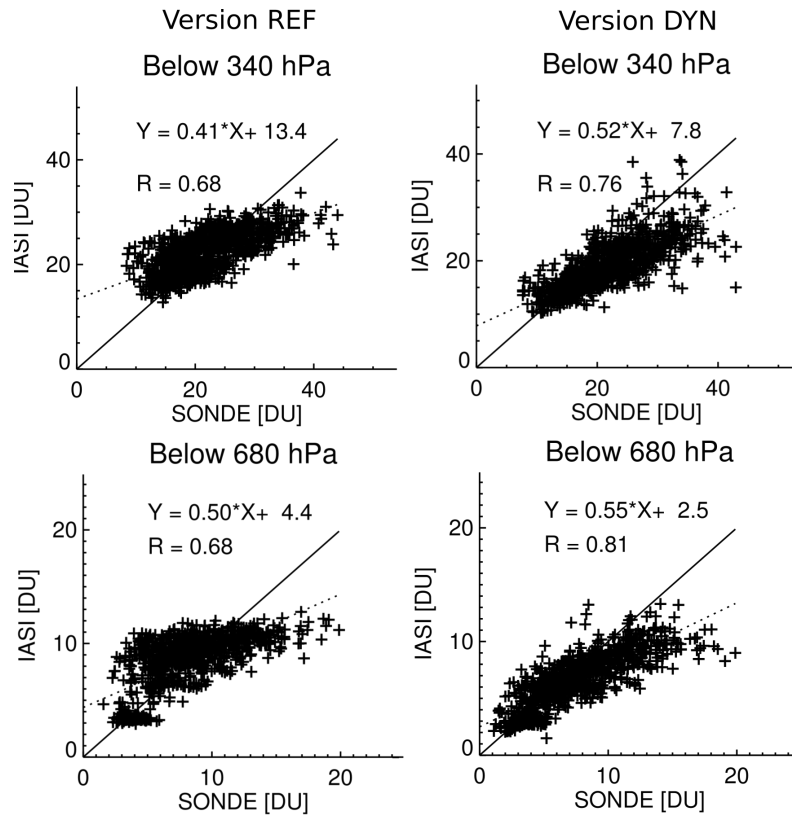


Figure 7.10: Comparaison entre les restitutions REF (à gauche) et DYN (à droite) et les sondes d’ozone WOUDC de 2008 à 2009. Les panneaux du haut correspondent aux colonnes troposphériques en dessous de 340 hPa et les panneaux du bas correspondent aux colonnes en dessous de 680 hPa. Pour chaque sous figure, les validations statistiques (corrélation et équations de regression linéaire) sont incluses.

650 hPa).

Pour la colonne troposphérique, l’accord entre les restitutions IASI et les colonnes WOUDC est meilleur pour la version DYN qu’avec la version REF, avec un coefficient de corrélation  $R = 0.76$  et des pentes issues d’un ajustement linéaire de 0.52 (au lieu de 0.41 avec REF). La corrélation est également meilleure pour la basse troposphère avec la version DYN (0.81) qu’avec la version REF (0.68).

Les améliorations apportées avec la version DYN sont très notables par rapport à la version REF. En particulier, la variabilité de IASI avec la version DYN est meilleure grâce à l’apport dynamique du modèle plus proche de celle des sondes dans la troposphère et dans la basse troposphère que par rapport à la version REF. Bien que le modèle MOCAGE et le schéma chimique linéaire CARIOLLE ne contiennent que très peu d’information sur les sources d’émissions en basse troposphère, n’apportant des améliorations qu’au niveau de l’UTLS, il s’avère que l’utilisation d’a-priori et de matrice de covariance dynamique permet d’augmenter la capacité des données IASI à fournir plus d’informations dans la basse troposphère. La version DYN augmente notamment la capacité de SOFRID à restituer les plus faibles valeurs d’ozone comparée à la version REF.

## 7.5 Validation concernant la variabilité d'ozone lors d'un évènement ENSO

Les validations précédentes ont permis de montrer pour les restitutions IASI-SOFRID une réduction des biais ainsi qu'une meilleure variabilité d'ozone avec la version DYN. Il s'agit dans cette section de valider les restitutions de la version DYN lors d'un événement particulier affectant la variabilité de l'ozone troposphérique dans la bande tropicale tel que le phénomène ENSO. Cet évènement a déjà été étudié précédemment dans le chapitre 6. Rappelons que l'analyse IASIMLS-a utilisant les restitutions de la version REF montre une assez bonne variabilité en comparaison avec les sondes d'ozone et avec la colonne troposphérique OMI-MLS lors des phénomènes El Niño et La Niña, mais possède un biais sur toute la colonne troposphérique. Dans ce cas de validation, les données OMI-MLS sont prises comme référence (préalablement validées dans l'article de [Ziemke et al., 2006]).

Plusieurs moyennes mensuelles sont étudiées dans la suite, montrant la répartition de la TCO influencée par l'évènement ENSO. Rappelons que pour l'étude de l'ENSO, deux régions ont été identifiées par [Ziemke et al., 2010], qui sont les régions IIO (*Indonesia with Indian Ocean*, 15° S - 15° N et 180° W - 110° W) et POC (*Pacific Ocean Center*, 15° S - 15° N et 70° E - 140° E).

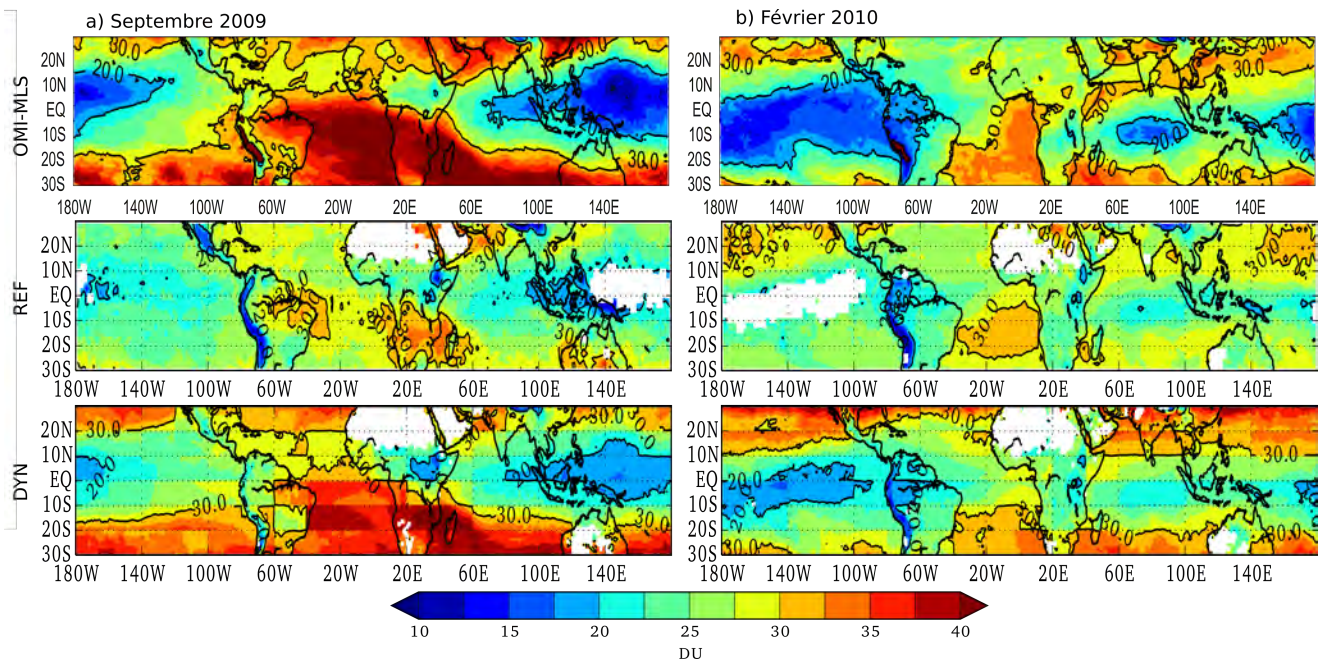


Figure 7.11: Moyenne mensuelle (30° S - 30° N et 180° W - 180° E) pour la TCO (en DU) des données OMI-MLS (en haut), de la version REF (au milieu) et de la version DYN (en bas). Les moyennes mensuelles sont : a) septembre 2009 et b) février 2010. Les données résiduelles de OMI-MLS proviennent de la NASA Goddard Space Flight Center (<https://acd-ext.gsfc.nasa.gov/Dataservices/cloudslice/>). Les niveaux de tropopause pour chaque colonne troposphérique sont identiques entre les versions et les données OMI-MLS provenant du NCEP.

La figure 7.11 représente les moyennes mensuelles de septembre 2009 et de février



2010 pour les données OMI-MLS, les restitutions de la version REF et de la version DYN. Le mois de septembre 2009 (figure 7.11a) représente la répartition caractéristique de la cellule de Walker bien que ce mois-ci soit une transition vers le phénomène El Niño. Les données OMI-MLS montrent alors une TCO relativement faible (10 - 15 DU) sur la région IIO et une TCO comprise entre 10 DU et 25 DU sur la région POC. Les niveaux de TCO élevés (environ 40 DU) se situent de l'océan Atlantique jusqu'au sud de l'océan Indien. Alors que la version REF ne représente une TCO maximale que de l'ordre de 30 - 32 DU au dessus de l'Afrique et une TCO minimale de 17 - 20 DU sur l'Indonésie, la version DYN reproduit aussi bien les ordres de grandeur que la répartition géographique de la TCO observés par les données OMI-MLS.

Les données manquantes aux niveaux des nuages convectifs sur les figures de la version REF pourraient être dues au filtrage de la couverture nuageuse (où seule la couverture nuageuse inférieure à 20 % est retenue dans les restitutions) utilisé dans SOFRID et appliqué avant le calcul du transfert radiatif et du 1D-Var. Cependant ce même filtre est utilisé quelque soit la version de restitution et avant l'utilisation des profils a-priori et matrices de covariance. Le filtre appliqué dans SOFRID pour éliminer les pixels ayant des nuages convectifs est appliqué lors du pré-traitement. Les non-déterminations sont donc dues à la non convergence du code de restitution de SOFRID qui ne peut alors fournir de restitutions avec la version REF. Dans les zones de convergence, tel que sur l'Indonésie en septembre 2009 et dans la région POC en février 2010, le profil a-priori et la matrice dynamique sont plus proches de la réalité faisant converger le code vers les restitutions. Le profil a-priori et la matrice de la version REF semblent trop éloignés de la réalité dans les zones convectives faisant échouer la convergence de l'algorithme. Le manque de pixels avec la version REF sur l'océan Pacifique tropical est plus important qu'avec la version DYN (figures non montrées). Cependant des informations étaient présentes avec la version REF dans l'étude sur la variabilité de l'ozone troposphérique lors de l'ENSO (chapitre 6) qui résultaient de la propagation d'informations aux bord due à l'assimilation de données.

Les données sont également manquantes au niveau des zones désertiques tel que le Sahara ou le désert Australien car le code 1D-Var ne converge pas. En regardant de plus près les figures de la version DYN il apparaît des carrés de 10° de latitude par 20° de longitude. En effet, les restitutions DYN dépendent d'un profil a-priori moyenné sur 10° x 20° afin de diminuer considérablement le temps de calcul en utilisant les matrices de covariances dynamiques journalières. Cet effet peut être atténué en utilisant des profils a-priori moyennés sur une grille de 2° de latitude par 2° de longitude, telle que celle du modèle.

La comparaison entre les données OMI-MLS et les deux versions de restitutions, a également été faite avec l'analyse MLS-a (voir Annexe D), afin d'observer la valeur ajoutée de l'analyse dans le profil a-priori et la matrice de covariance associée utilisée dans la version DYN.

Le mois de février 2010 (figure 7.11b) correspond à la répartition géographique au niveau des tropiques d'un événement El Niño. Comme le montrent les données OMI-MLS, la TCO minimale qui se trouvait sur la région IIO s'est déplacée sur la région POC voir même jusqu'aux côtes du continent Américain. La TCO au dessus

de l'Indonésie présente alors des valeurs d'environ 25 DU. La version REF montre très légèrement ce déplacement de la région IIO vers la région POC avec les mêmes ordres de grandeur que pour le mois de septembre 2009. Le déplacement de la TCO minimale lors de l'évènement El Niño est bien marqué avec la version DYN. La TCO maximale se trouve entre l'océan Atlantique et l'océan Indien avec des valeurs entre 30 et 35 DU, même ordre de grandeur pour les données OMI-MLS et la version DYN.

Afin de caractériser la transition pour la variabilité de la TCO vers le phénomène La Niña, la figure 7.12 montre les moyennes mensuelles de juillet 2010 et décembre 2010.

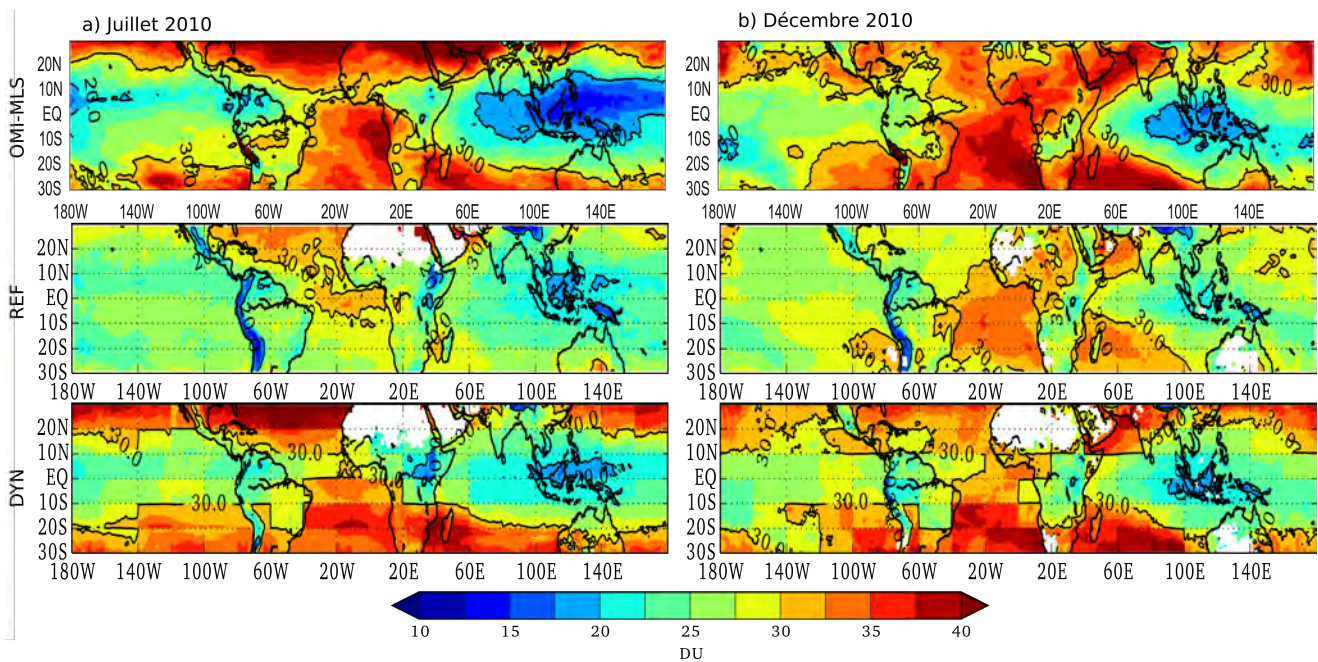


Figure 7.12: Idem que pour la figure 7.11 mais pour les moyennes mensuelles de : a) juillet 2010 et b) décembre 2010.

Les données OMI-MLS de juillet 2010 montrent une transition vers La Niña avec une TCO redevenue minimale dans la région IIO et une TCO qui tend à être plus élevée dans la région POC (valeurs allant de 17 DU à 30 DU). Cette répartition de TCO entre les régions IIO et POC est observable avec la version DYN contrairement à la version REF. Cette dernière présente bien une TCO minimale sur l'Indonésie et une TCO comprise entre 22 et 30 DU sur tout l'océan Pacifique mais sous-estime l'amplitude de la différence des TCO entre ces deux régions.

Durant les mois de décembre 2010 et janvier 2011 La Niña est dans sa phase maximale. Les TCO des données OMI-MLS montrent bien lors de cet évènement une TCO minimale sur la région IIO et une TCO maximale sur la région POC atteignant des valeurs jusqu'à 35 DU. Ces valeurs maximales ne sont pas atteintes par la version REF qui possède une TCO maximale sur la région POC d'environ 30 DU. Alors qu'avec la version DYN, la TCO atteint bien des valeurs jusqu'à 35 DU avec une répartition géographique des TCO sur la moyenne zonale 30° S - 30° N quasiment identique à celle des données OMI-MLS.

Pour conclure, la version DYN permet de reproduire de manière très réaliste la variabilité de la colonne d’ozone troposphérique dans les tropiques lors de l’évènement ENSO de 2009 - 2011. Les résultats de la version DYN sont bien meilleurs que ceux de la version REF. Les biais de l’algorithme de restitution sont très réduits en utilisant les profils a-priori et les matrices de covariance dynamiques.

## 7.6 Conclusion

Dans ce chapitre, une nouvelle version de restitution des données IASI-SOFRID a été présentée et ses résultats ont été évalués. Alors que les restitutions IASI-SOFRID s’appuyaient sur un profil a-priori et une matrice de covariance associée basés sur les données radiosondages et aéroportées de 2008 moyennés pour tout le globe, des profils a-priori horaires basés sur l’analyse MLS-a ont été construits. Les matrices de covariance associées ont également été construites en se basant sur ces profils a-priori et avec des paramètres variant suivant l’altitude de la tropopause. Nos profils a-priori et matrices de covariance journaliers dépendent donc du modèle de chimie-transport qui donne des informations sur la dynamique atmosphérique et des données stratosphériques MLS qui apportent les informations dans la stratosphère et l’UTLS.

Les restitutions utilisant l’a-priori et la matrice de covariance de référence montrent des biais dans les hautes latitudes de l’hémisphère Nord et Sud (chapitre 5), et des biais dans les tropiques (chapitre 6). En utilisant les profils a-priori et matrices de covariances associées avec l’analyse MLS-a (restitutions DYN), les biais observés avec la version REF ont été réduits de 20 % dans l’hémisphère Sud. Ces biais ont été réduits aussi bien dans l’UTLS que dans la troposphère. De même, la corrélation avec les sondes a augmenté de 0.4 entre la version REF et la version DYN.

Alors que dans l’hémisphère Nord la variabilité reste pratiquement inchangée entre les deux versions, les biais dans la colonne troposphérique avec la version DYN ont augmenté de 10 % par rapport à la version REF. Ce biais de 10 % dans la basse troposphère est probablement dû au schéma linéaire CARIOLLE qui, comme discuté dans les chapitres précédents, ne contient aucune information sur les émissions de surface, plus fortes dans l’hémisphère Nord que dans l’hémisphère Sud.

Aux basses latitudes, lors d’un évènement ENSO dans la bande tropicale, la version DYN donne des résultats bien meilleurs que la version de référence et permet de caractériser la variabilité de la colonne d’ozone troposphérique dans les tropiques lors de conditions normales de circulations atmosphériques et lors d’évènements ENSO.

Il a également été montré que la restitution DYN réduit considérablement les biais dans l’hémisphère Sud, alors qu’un faible pourcentage de biais est apporté dans l’hémisphère Nord. Ainsi, malgré la précision et les améliorations apportées par nos profils a-priori et matrices dynamiques, des erreurs de restitutions subsistent.

Deux options d’étude apparaissent intéressantes à explorer pour réduire ces biais. La première est l’utilisation d’un modèle de chimie transport plus adapté à la description de la chimie dans la couche limite. MOCAGE peut être utilisé avec le schéma plus complet RACMOBUS, mais son coût numérique est assez important.



Par ailleurs, nos matrices ont été implémentées dans SOFRID sur des grilles de  $10^\circ$  de latitude par  $20^\circ$  de longitude pour les intégrer plus facilement et rapidement. Il faudrait les intégrer sur la même grille que MOCAGE avec une résolution de  $2^\circ \times 2^\circ$  et observer les précisions ajoutées par la résolution.

L'autre axe d'étude porterait sur l'assimilation directe des radiances de l'instrument IASI. Nous nous affranchirions ainsi de l'étape de détermination de profils a-priori et de leur matrice de covariance s'affranchirait ainsi. Il s'agit de développements importants dont les résultats de cette thèse justifierait leur engagement.



# Conclusion et perspectives

Six années (de janvier 2008 à décembre 2013) d'analyse d'ozone troposphérique ont été réalisées en assimilant les données stratosphériques de MLS (Microwave Limb Sounder) et troposphériques de IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer). Les données ont été assimilées avec le modèle de chimie-transport MOCAGE en utilisant un algorithme variationnel 4D-Var et le schéma linéaire d'ozone CARIOLLE. Trois simulations ont été effectuées : avec le modèle direct sans assimilation ("Model direct"), l'analyse "MLS-a" avec assimilation des profils stratosphériques de MLS, et l'analyse "IASIMLS-a" avec assimilation simultanée des colonnes troposphériques de IASI et des profils stratosphériques de MLS.

Après avoir montré les améliorations apportées par IASIMLS-a, par comparaison aux sondes, par rapport au Modèle direct et à MLS-a sur une période de 2 mois, les séries temporelles par bande de latitude ont été étudiées sur la période 2008 à 2013. Les validations par bande de latitude ont montré des biais moins importants dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud avec IASIMLS-a. De plus, la variabilité temporelle de l'ozone troposphérique dans les hautes latitudes est mal représentée dans l'analyse IASIMLS-a. Dans l'analyse IASIMLS-a, les données de MLS apportent de l'information dans la stratosphère et la haute troposphère-basse stratosphère (UTLS), alors que les données IASI apportent de l'information dans la troposphère libre, particulièrement dans l'hémisphère Nord et les tropiques. Par contre, les données de IASI apportent peu d'information dans les basses couches de l'atmosphère, la qualité de l'analyse IASIMLS-a est donc très limitée dans la basse troposphère.

Dans les tropiques ( $30^{\circ}$  S -  $30^{\circ}$  N), IASIMLS-a possède, par comparaison aux sondes, un minimum de biais dans la colonne d'ozone troposphérique (TCO) et une meilleure variabilité par rapport aux autres latitudes. Ces résultats nous ont conduit à une analyse plus complète des simulations pour caractériser la variabilité de l'ozone tropical et l'impact sur sa distribution du phénomène ENSO dans le Pacifique. Les oscillations saisonnières de l'ozone induites par la circulation générale et les émissions anthropogéniques des précurseurs de l'ozone, et par l'ENSO sont bien reproduites avec IASIMLS-a. Notamment, l'amplitude des anomalies d'ozone au niveau du Pacifique tropical durant l'événement ENSO de 2010 est correctement reproduite avec IASIMLS-a. Par ailleurs, les données troposphériques de IASI apportent une information supplémentaire sur la verticale dans la troposphère libre par rapport au modèle direct et à MLS-a.

Avec cette étude sur l'ENSO, la comparaison aux sondes entre  $15^{\circ}$  S et  $15^{\circ}$  N pour la couche limite, la troposphère libre et la TCO ont montré l'existence de biais

supplémentaires dans la couche limite avec IASIMLS-a par rapport aux deux autres simulations. Ce biais, supérieur à celui des autres niveaux, est dû aux limitations du schéma chimique linéaire qui ne prend pas en compte les émissions de surface et à la faible sensibilité de IASI dans les basses couches. Une cause supplémentaire possible à la présence de ces biais provient des restitutions de IASI par SOFRID qui apparaissent assez sensibles aux profils d’ozone a-priori utilisés dans l’algorithme d’inversion.

Dans la version initiale de SOFRID, les profils a-priori et les matrices de covariance associées sont construites en moyennant des données de radiosondages et des mesures aéroportées, fournissant un profil unique et une seule matrice pour tout le globe. Cette option a été évaluée dans des publications précédentes. Elle montre, d’une manière générale, une bonne capacité à reproduire les profils d’ozone sur la verticale. Cependant des biais ont été mis en évidence sur de courtes périodes dans l’UTLS, aux tropiques et dans les moyennes latitudes. Nos six années d’études mentionnées précédemment ont également confirmé la présence de ce biais.

Un travail important a donc été effectué pour développer une nouvelle méthode de construction des profils a-priori et des matrices de covariances nécessaires dans l’algorithme d’inversion, l’objectif étant de réduire les biais par rapport aux sondes dans les restitutions de IASI-SOFRID. L’information clé manquante dans les matrices de covariance était l’information sur le niveau de la tropopause marquant la séparation entre les fortes concentrations d’ozone stratosphérique et les plus faibles valeurs d’ozone troposphérique (de près d’un facteur 100). De plus, les sensibilités de chaque instrument et du modèle nécessitent d’introduire dans l’assimilation des erreurs relatives différenciées sur la verticale, de 30 % dans la troposphère et de 10 % dans la stratosphère. Afin d’apporter des informations sur le niveau de la tropopause et sur l’ozone stratosphérique, l’analyse MLS-a a été utilisée pour obtenir les profils a-priori. Nous avons donc créé une matrice de covariance associée prenant en compte le niveau de la tropopause avec des écarts-types de 10 % et 30 % du profil a-priori MLS-a pour la stratosphère et la troposphère respectivement. De plus, dans notre version dite “dynamique”, des profils a-priori et des matrices de covariance journalières sont générées sur une grille de 10° de latitude par 20° de longitude. L’idée principale a donc été d’utiliser le modèle de chimie-transport MOCAGE dans le calcul de profils a-priori pour observer l’influence de ces profils a-priori dans les restitutions de IASI-SOFRID.

Les validations effectuées avec les sondes ont montré l’importance d’utiliser, dans l’algorithme de restitution des profils de IASI, un profil a-priori et une matrice de covariance possédant une meilleure précision sur la verticale. L’amélioration de l’algorithme de restitution IASI-SOFRID passe donc à l’avenir par une meilleure détermination des profils a-priori utilisés. La méthode dynamique que nous avons développée pourrait être introduite dans les prochaines versions. A plus long terme, afin d’éviter l’erreur introduite par le choix d’un profil a-priori, il pourrait s’envisager d’assimiler directement les radiances de IASI dans les modèles de chimie transport. Cette stratégie est déjà adoptée pour la température dans les modèles de prévision météorologique, elle pourrait être également étudiée pour les constituants mineurs de l’atmosphère, notamment l’ozone.

Bien que notre version avec les a-priori dynamiques a amélioré les restitutions

d’ozone sur la verticale, il reste cependant des biais introduits par le modèle, particulièrement dans la couche limite. Les résultats que nous avons obtenus pourraient donc être améliorés en utilisant un modèle plus complet de chimie atmosphérique, permettant de prendre en compte les précurseurs de l’ozone émis en surface pour obtenir une meilleure simulation de la distribution de l’ozone dans la basse troposphère.

En étudiant la variabilité de l’ozone troposphérique dans le Pacifique nous avons montré que l’assimilation des données de IASI est très comparable à celle déduite des méthodes de référence (détermination des contenus d’ozone par différence entre ozone total et ozone stratosphérique), malgré les biais présents dans le modèle. L’assimilation apporte de plus une importante valeur ajoutée à ces études, avec la détermination de profils verticaux dans la troposphère, l’évaluation du contenu en ozone à fréquence horaire sur tout le globe, et la perspective d’utiliser un nombre plus important de données. Les données du sondeur IASI sont disponibles depuis 2007 et, avec la nouvelle génération de IASI (IASI-NG), ces données seront disponibles jusque dans les années 2050 ouvrant la possibilité d’étudier de longues séries temporelles d’ozone troposphérique. Parallèlement, les modèles numériques évolueront avec de meilleures résolutions verticales et horizontales ainsi que l’utilisation de modules chimiques plus complets permettant des analyses de meilleures qualités. L’ensemble IASI-Assimilation devrait donc devenir un outil de choix pour l’étude sur plusieurs décennies de la variabilité de l’ozone troposphérique, notamment la mise en évidence et l’étude des tendances dont l’amplitude est actuellement sujet à débat.



# Bibliographie

- [Moh, 2008] (2008). *Transport Processes in the Stratosphere and Troposphere*, pages 307–329. Springer Netherlands, Dordrecht.
- [Andreae et al., 1998] Andreae, M. O., Andreae, T. W., Annegarn, H., Beer, J., Cachier, H., Canut, P. L., Elbert, W., Maenhaut, W., Salma, I., Wienhold, F. G., and Zenker, T. (1998). Airborne studies of aerosol emissions from savanna fires in southern Africa. *Journal of Geophysical Research: Space Physics*, 103(D24):32119–32128.
- [Appenzeller and Davies, 1992] Appenzeller, C. and Davies, H. (1992). Structure of stratospheric intrusions into the troposphere. *Nature*, 358:570–572.
- [Ardanuy and Lee Kyle, 1985] Ardanuy, P. E. and Lee Kyle, H. (1985). El Nino and Outgoing Longwave Radiation : Observations from Nimbus-7 ERB. *American Meteorological Society*, 114:415–433.
- [Aumann et al., 2003] Aumann, H. H., Chahine, M. T., Gautier, C., Goldberg, M. D., Kalnay, E., McMillin, L. M., Revercomb, H., Rosenkranz, P. W., Smith, W. L., Staelin, D. H., Strow, L. L., and Susskind, J. (2003). AIRS/AMSU/HSB on the aqua mission: design, science objectives, data products, and processing systems. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 41(2):253–264.
- [Austin, 1992] Austin, J. (1992). Toward the four dimensional assimilation of stratospheric chemical constituents. *Journal of Geophysical Research*, 97(D2):2569–2588.
- [Baier et al., 2005] Baier, F., Erbertseder, T., Morgenstern, O., Bittner, M., and Brasseur, G. (2005). Assimilation of MIPAS observations using a three-dimensional chemical-transport model. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131:3529–3542.
- [Barnston et al., 1997] Barnston, A. G., Chelliah, M., and Goldenberg, S. B. (1997). Documentation of a Highly ENSO-related SST region in the Equatorial Pacific. *Atmosphere-Ocean*, 35:367–383.
- [Barret et al., 2011] Barret, B., Le Flochmoen, E., Sauvage, B., Pavelin, E., Matricardi, M., and Cammas, J. P. (2011). The detection of post-monsoon tropospheric ozone variability over south Asia using IASI data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(18):9533–9548.

- [Barret et al., 2016] Barret, B., Sauvage, B., Bennouna, Y., and Le Flochmoen, E. (2016). Upper-tropospheric CO and O<sub>3</sub> budget during the Asian summer monsoon. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(14):9129–9147.
- [Barret et al., 2005] Barret, B., Turquety, S., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Bey, I., Auvray, M., and Coheur, P.-F. (2005). Global carbon monoxide vertical distributions from spaceborne high-resolution FTIR nadir measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(4):4599–4639.
- [Bechtold et al., 2001] Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., and Richard, E. (2001). A mass-flux convection scheme for regional and global models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127:869–886.
- [Beer, 1999] Beer, R. (1999). TES Scientific Objectives {&} Approach, Goals {&} Requirements. *Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology*, D-11294(Revision 6.0).
- [Bell et al., 2004] Bell, M. L., McDermott, A., Zeger, S. L., Samet, J. M., and Dominici, F. (2004). Ozone and mortality in 95 US urban communities, 1987 to 2000. *JAMA, National Institutes of Health*, 292(19):2372–2378.
- [Berrisford et al., 2011] Berrisford, P., Dee, D. P., Poli, P., Brugge, R., Fielding, K., Fuentes, M., Kallberg, P. W., Kobayashi, S., Uppala, S., and Simmons, A. (2011). The ERA-Interim archive Version 2.0. Shinfield Park, Reading.
- [Bethan S. and Reid, 1996] Bethan S., G. and Reid, S. J. (1996). A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 122:929–944.
- [Bhartia, 2002] Bhartia, P. K. (2002). OMI Algorithm Theoretical Basis Document, Volume II, OMI Ozone Products. *NASA-OMI, Washington, DC, ATBD-OMI-02, version 2.0*, II(August).
- [Bjerknes, 1969] Bjerknes, J. (1969). Atmospheric Teleconnections From The Equatorial Pacific. *Monthly Weather Review*, 97(3):163–172.
- [Borbas and Ruston, 2010] Borbas, E. E. and Ruston, B. C. (2010). The RTTOV UWiremis IR land surface emissivity module The RTTOV UWiremis IR land surface emissivity module. *Associate Scientist mission report*, 1.0(June):0–24.
- [Bousserez et al., 2007] Bousserez, N., Attié, J. L., Peuch, V. H., Michou, M., Pfister, G., Edwards, D., Emmons, L., Mari, C., Barret, B., Arnold, S. R., Heckel, A., Richter, A., Schlager, H., Lewis, A., Avery, M. A., Sachse, G. W., Browell, E. V., and Hair, J. W. (2007). Evaluation of the MOCAGE chemistry transport model during the ICARTT/ITOP experiment. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(10):1–18.
- [Boynard et al., 2009] Boynard, A., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Turquety, S., George, M., Hadji-Lazaro, J., Keim, C., and Meyer-Arneke, J. (2009).



- Measurements of total and tropospheric ozone from IASI: comparison with correlative satellite and ozonesonde observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:10513–10548.
- [Brewer and Milford, 1960] Brewer, A. W. and Milford, J. R. (1960). The Oxford-Kew Ozone sonde. *Proc. R. Soc. London*, A256:470–495.
- [Buis et al., 2006] Buis, S., Piacentini, A., and Déclat, D. (2006). PALM : a computational framework for assembling high-performance computing applications. *Concur. and Comput. : Pract. and Exp.*, 18(2):231–245.
- [Cariolle and Deque, 1986] Cariolle, D. and Deque, M. (1986). Southern Hemisphere medium-scale waves and total ozone disturbances in a spectral general circulation model. *Journal of Geophysical Research*, 91:10825–10846.
- [Cariolle and Teyssedre, 2007] Cariolle, D. and Teyssedre, H. (2007). A revised linear ozone photochemistry parameterization for use in transport and general circulation models : multi-annual simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (2006):2183–2196.
- [Cathala, 2004] Cathala, M.-L. (2004). Assimilation de mesures chimiques d’ozone au niveau de la tropopause dans un Modèle de Chimie-Transport Global. *PhD thesis, Sciences de l’Univers, de l’Environnement et de l’Espace - Toulouse III - France*.
- [Chameides and Walker, 1973] Chameides, W. and Walker, J. (1973). A photochemical theory of tropospheric ozone. *Journal of Geophysical Research*.
- [Chandra, 2003] Chandra, S. (2003). Tropospheric ozone at tropical and middle latitudes derived from TOMS/MLS residual: Comparison with a global model. *J. Geophys. Res*, 108(D9):4291.
- [Chandra et al., 2002] Chandra, S., Ziemke, J. R., Barthia, P. K., and Martin, R. V. (2002). Tropical tropospheric ozone : Implications for dynamics and biomass burning. *Journal of Geophysical Research*, 107(No. D14, 4188).
- [Chandra et al., 2009] Chandra, S., Ziemke, J. R., Duncan, B. N., Diehl, T. L., Livesey, N. J., and Froidevaux, L. (2009). Effects of the 2006 El Niño on tropospheric ozone and carbon monoxide: implications for dynamics and biomass burning. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(13):4239–4249.
- [Chandra et al., 1998] Chandra, S., Ziemke, J. R., Min, W., and Read, W. G. (1998). Effects of 1997-1998 El Nino on tropospheric ozone and water vapor.
- [Chandra et al., 2004] Chandra, S., Ziemke, J. R., Tie, X., and Brasseur, G. (2004). Elevated ozone in the troposphere over the Atlantic and Pacific oceans in the Northern Hemisphere. *Geophysical Research Letters*, 31(23):1–4.
- [Chipperfield and Jones, 1999] Chipperfield, M. P. and Jones, R. L. (1999). Relative influences of atmospheric chemistry and transport on Arctic ozone trends. *Nature*, 400:551–554.

- [Clarke, 2008] Clarke, A. (2008). An Introduction to the Dynamics of El Nino and the Southern Oscillation. *Academic Press*.
- [Clerbaux et al., 2009] Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F. (2009). Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16):6041–6054.
- [Clough et al., 2005] Clough, S. A., Shephard, M. W., Mlawer, E. J., Delamere, J. S., Iacono, M. J., Cady-Pereira, K., Boukabara, S., and Brown, P. D. (2005). Atmospheric radiative transfer modeling: A summary of the AER codes. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 91(2):233–244.
- [Coe, 2002] Coe, H. (2002). Retrieval of vertical profiles of NO<sub>3</sub> from zenith sky measurements using an optimal estimation method. *Journal of Geophysical Research*, 107(D21):4587.
- [Coheur et al., 2009] Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C. (2009). IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(15):5655–5667.
- [Cooper et al., 2014] Cooper, O. R., Parrish, D. D., Ziemke, J., Balashov, N. V., Cupeiro, M., Galbally, I. E., Gilge, S., Horowitz, L., Jensen, N. R., Lamarque, J.-F., Naik, V., Oltmans, S. J., Schwab, J., Shindell, D. T., Thompson, a. M., Thouret, V., Wang, Y., and Zbinden, R. M. (2014). Global distribution and trends of tropospheric ozone: An observation-based review. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 2:29.
- [Courtier et al., 1994] Courtier, P., Thepaut, J.-J., and Hollingsworth, A. (1994). A strategy for operational implementation of 4D-Var, using an incremental approach. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 120:1367–1388.
- [Cracknell and Varotsos, 2012] Cracknell, A. P. and Varotsos, C. A. (2012). Remote Sensing and Atmospheric Ozone : Human Activities versus Natural Variability. *Springer - Praxis books in environmental sciences*, page 125.
- [Craig, 1965] Craig, R.-A. (1965). The upper atmosphere, meteorology and physics. *Academic Press*, 8:23–25.
- [Crutzen, 1974a] Crutzen, P. J. (1974a). Estimates of Possible Variations in Total Ozone Due to Natural Causes and Human Activities. *Ambio*, 3(6):201–210.
- [Crutzen, 1974b] Crutzen, P. J. (1974b). Photochemical reactions initiated by and influencing ozone in unpolluted tropospheric air. *Tellus A*, XXVI(1971):47–57.
- [Curtis and Adler, 2000] Curtis, S. and Adler, R. (2000). ENSO indices based on patterns of satellite-derived precipitation. *Journal of Climate*, 13(15):2786–2793.

- [Dee et al., 2011] Dee, D. P., Uppala, S. M., Simmons, A. J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M. A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A. C., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A. J., Haimberger, L., Healy, S. B., Hersbach, H., Hólm, E. V., Isaksen, I., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A. P., Monge-Sanz, B. M., Morcrette, J. J., Park, B. K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J. N., and Vitart, F. (2011). The ERA-Interim reanalysis: Configuration and performance of the data assimilation system. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(656):553–597.
- [Delmas et al., 2005] Delmas, R., Mégie, G., and Peuch, V.-h. (2005). Physique et chimie de l’atmosphère.
- [Déqué et al., 1994] Déqué, M., Dreveton, C., Braun, A., and Cariolle, D. (1994). The ARPEGE/IFS atmosphere model: a contribution to the French community climate modelling. *Climate Dynamics*, 10:249–266.
- [Deshler et al., 2008] Deshler, T., Mercer, J. L., Smit, H. G. J., Stubi, R., Levrat, G., Johnson, B. J., Oltmans, S. J., Kivi, R., Thompson, A. M., Witte, J., Davies, J., Schmidlin, F. J., Brothers, G., and Sasaki, T. (2008). Atmospheric comparison of electrochemical cell ozonesondes from different manufacturers, and with different cathode solution strengths: The Balloon Experiment on Standards for Ozonesondes. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 113(4):1–17.
- [Dobber et al., 2006] Dobber, M. R., Dirksen, R. J., Levelt, P. F., Van Den Oord, G. H. J., Voors, R. H. M., Kleipool, Q., Jaross, G., Kowalewski, M., Hilsenrath, E., Leppelmeier, G. W., De Vries, J., Dierssen, W., and Rozemeijer, N. C. (2006). Ozone monitoring instrument calibration. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5):1209–1238.
- [Dobson, 1956] Dobson, G. M. B. (1956). Origin and Distribution of the Polyatomic Molecules in the Atmosphere. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 236(1205):187–193.
- [Doherty et al., 2005] Doherty, R. M., Stevenson, D. S., Collins, W. J., and Sanderson, M. G. (2005). Influence of convective transport on tropospheric ozone and its precursors in a chemistry-climate model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3):3747–3771.
- [Doherty et al., 2006] Doherty, R. M., Stevenson, D. S., Johnson, C. E., Collins, W. J., and Sanderson, M. G. (2006). Tropospheric ozone and El Niño–Southern Oscillation: Influence of atmospheric dynamics, biomass burning emissions, and future climate change. *Journal of Geophysical Research*, 111(D19):1–21.
- [Dufour et al., 2005] Dufour, A., Amodei, M., Ancellet, G., and Peuch, V.-H. (2005). Observed and modelled chemical weather during ESCOMPTE. *Atmospheric Research*, 74:161–189.

- [Dufour et al., 2012] Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., LeFlochmoën, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D. (2012). Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(3):611–630.
- [Dufour et al., 2010] Dufour, G., Eremenko, M., Orphal, J., and Flaud, J.-M. (2010). IASI observations of seasonal and day-to-day variations of tropospheric ozone over three highly populated areas of China: Beijing, Shanghai, and Hong Kong. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(8):3787–3801.
- [Ebi and McGregor, 2008] Ebi, K. L. and McGregor, G. (2008). Climate change, tropospheric ozone and particulate matter, and health impacts. *Environmental Health Perspectives*, 116(11):1449–1455.
- [Ebojie et al., 2016] Ebojie, F., Burrows, J. P., Gebhardt, C., Ladstätter-Weibenmayer, A., Von Savigny, C., Rozanov, A., Weber, M., and Bovensmann, H. (2016). Global tropospheric ozone variations from 2003 to 2011 as seen by SCIAMACHY. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(2):417–436.
- [El Amraoui et al., 2010] El Amraoui, L., Attié, J., Semane, N., Claeysman, M., Peuch, V., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J., Piacentini, A., and Josse, B. (2010). Midlatitude stratosphere–troposphere exchange as diagnosed by MLS O<sub>3</sub> and MOPITT CO assimilated fields. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:2175–2194.
- [El Amraoui et al., 2008] El Amraoui, L., Semane, N., Peuch, V. H., and Santee, M. L. (2008). Investigation of dynamical processes in the polar stratospheric vortex during the unusually cold winter 2004/2005. *Geophysical Research Letters*, 35(3):1–5.
- [Elbern and Schmid, 1999] Elbern, H. and Schmid, H. (1999). A four-dimensional variational chemistry data assimilation scheme for Eulerian chemistry transport modeling. *Journal of Geophysical Research*, 104:18583–18598.
- [Elbern and Schmidt, 2001] Elbern, H. and Schmidt, H. (2001). Ozone Episode Analysis by Four-Dimensional Variational Chemistry Data Assimilation. *Journal of Geophysical Research*, D4(106):3569–3590.
- [Elbern et al., 1997] Elbern, H., Schmidt, H., and Ebel, A. (1997). Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research*, 102(D13):15967–15985.
- [Elbern et al., 2000] Elbern, H., Schmidt, H., Talagrand, O., and Elbel, A. (2000). 4D-variational data assimilation with an adjoint air quality model for emission analysis. *Environmental Modelling & Software*, 15(6-7):539–548.
- [Emili et al., 2014] Emili, E., Barret, B., Massart, S., Le Flochmoen, E., Piacentini, A., El Amraoui, L., Pannekoucke, O., and Cariolle, D. (2014). Combined assimilation of IASI and MLS observations to constrain tropospheric and stratospheric

- ozone in a global chemical transport model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(1):177–198.
- [Eremenko et al., 2008] Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., and Flaud, J. M. (2008). Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI. *Geophysical Research Letters*, 35(18):1–5.
- [Errera and Fonteyn, 2001] Errera, Q. and Fonteyn, D. (2001). Four-dimensional variational chemical assimilation of CRISTA stratospheric measurements.
- [Eskes et al., 1999] Eskes, H., PETERS, A., Levelt, P., Allart, M., and Kelder, H. (1999). Variational assimilation of GOME total-column ozone satellite data in a 2D latitude-longitude tracer-transport model. *J. Atmosph. Sci.*, 56:3560–3572.
- [EUMETSAT, 2014] EUMETSAT (2014). IASI Level 1 Product Guide. page 110.
- [Fadnavis et al., 2008] Fadnavis, S., Beig, G., and Polade, S. (2008). Features of ozone quasi-biennial oscillation in the vertical structure of tropics and subtropics. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 99:221–231.
- [Feng et al., 2015] Feng, Z., Paoletti, E., Bytnerowicz, A., and Harmens, H. (2015). Ozone and plants. *Environmental Pollution*, 202:215–216.
- [Finlayson-Pitts and Pitts, 1977] Finlayson-Pitts, B. J. and Pitts, J. N. (1977). *The Chemical Basis of Air Quality: Kinetics and Mechanisms of Photochemical Air Pollution and Application to Control Strategies*. Advances in environmental science and technology. Wiley.
- [Finlayson-Pitts and Pitts, 1993] Finlayson-Pitts, B. J. and Pitts, J. N. (1993). Atmospheric chemistry of tropospheric ozone formation: Scientific and regulatory implications. *Air and Waste*, 43(8):1091–1100.
- [Fisher and Lary, 1995] Fisher, M. and Lary, D. J. (1995). Lagrangian four-dimensional variational data assimilation of chemical species. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 121(527):1681–1704.
- [Fishman et al., 1990] Fishman, J., Watson, C., Larsen, J., and Logan, J. (1990). Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data. *Journal of Geophysical Research*, 95:3599–3617.
- [Flohn, 1971] Flohn, H. (1971). Tropical Circulation Patterns. *Bonner. Meteorol. Abhandl. and in Physical and Dynamical Climatology*.
- [Fowler et al., 2008] Fowler, D., Amann, M., Anderson, R., Ashmore, M., Cox, P., Depledge, M., Derwent, D., Grennfelt, P., Hewitt, N., Hov, O., Jenkin, M., Kelly, F., Liss, P., Pilling, M., Pyle, J., Slingo, J., and Stevenson, D. (2008). *Ground-level ozone in the 21st century: future trends, impacts and policy implications*. Number October.

- [Froidevaux et al., 2008] Froidevaux, L., Jiang, Y. B., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Browell, E. V., Hair, J. W., Avery, M. A., McGee, T. J., Twigg, L. W., Sumnicht, G. K., Jucks, K. W., Margitan, J. J., Sen, B., Stachnik, R. A., Toon, G. C., Bernath, P. F., Boone, C. D., Walker, K. A., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Manney, G. L., Schwartz, M. J., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., and Wagner, P. A. (2008). Validation of Aura Microwave Limb Sounder stratospheric ozone measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113(D15):D15S20.
- [Fujiwara et al., 1999] Fujiwara, M., Kita, K., Kawakami, S., Ogawa, T., Komala, N., Saraspriya, S., and Suropto, A. (1999). Tropospheric ozone enhancements during the Indonesian Forest Fire Events in 1994 and in 1997 as revealed by ground-based observations. *Geophysical Research Letters*, 26:2417–2420.
- [Geer et al., 2006] Geer, A. J., Lahoz, W. A., Bekki, S., Bormann, N., Errera, Q., Eskes, H. J., Fonteyn, D., Jackson, D. R., Jukes, M. N., Massart, S., Peuch, V. H., Rharmili, S., and Segers, A. (2006). The ASSET intercomparison of ozone analyses: Method and first results. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12):5445–5474.
- [Geer et al., 2007] Geer, A. J., Lahoz, W. a., Jackson, D. R., Cariolle, D., and McCormack, J. P. (2007). Evaluation of linear ozone photochemistry parametrizations in a stratosphere-troposphere data assimilation system. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(3):939–959.
- [Gibson et al., 1997] Gibson, J., Källberg, P. W., Uppala, S., Hernandez, A., Nomura, A., and Serrano, E. (1997). ERA Description. Shinfield Park, Reading.
- [Giorgi and Chameides, 1986] Giorgi, F. and Chameides, W. (1986). Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model. *Journal of Geophysical Research*, 91:14367–14376.
- [Graedel et al., 1986] Graedel, T. E., Hawkins, D. T., and Claxton, L. D. (1986). Atmospheric chemical compounds: Sources, occurrence, and bioassay. *Academic Press*.
- [Guerreiro et al., 2012] Guerreiro, C., de Leeuw, F., Foltescu, V., Schilling, J., van Aardenne, J., Lükewille, A., and Adams, M. (2012). *Air quality in Europe*. Number 9.
- [Guilbert, 2003] Guilbert, J. J. (2003). The world health report 2002 - reducing risks, promoting healthy life. *Education for health (Abingdon, England)*, 16(2):230.
- [Hadjinicolaou et al., 2005] Hadjinicolaou, P., Pyle, J. A., and Harris, N. R. P. (2005). The recent turnaround in stratospheric ozone over northern middle latitudes: A dynamical modeling perspective. *Geophysical Research Letters*, 32(12):1–5.

- [Herbin et al., 2009] Herbin, H., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Clarisse, L., and Coheur, P. (2009). H<sub>2</sub>O and HDO measurements with IASI / MetOp. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:9433–9447.
- [Hollingsworth et al., 2008] Hollingsworth, A., Engelen, R. J., Textor, C., Benedetti, A., Boucher, O., Chevallier, F., Dethof, A., Elbern, H., Eskes, H., Flemming, J., Granier, C., Kaiser, J. W., Morcrette, J. J., Rayner, P., Peuch, V. H., Rouil, L., Schultz, M. G., and Simmons, A. J. (2008). Toward a monitoring and forecasting system for atmospheric composition: The GEMS project. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 89(8):1147–1164.
- [Holm et al., 1999] Holm, E. V., Untch, A., Simmons, A., Saunders, R., Bouttier, F., and Andersson, E. (1999). Multivariate ozone assimilation in four-dimensional data assimilation. In *SODA Workshop on Chemical Data Assimilation Proceedings, KNMI, De Bilt, the Netherlands*, volume KNMI-188, pages 89–94.
- [Honoré et al., 2008] Honoré, C., Rouil, L., Vautard, R., Beekmann, M., Bessagnet, B., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J. M., Malherbe, L., Meleux, F., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V. H., and Poisson, N. (2008). Predictability of European air quality: Assessment of 3 years of operational forecasts and analyses by the PREV’AIR system. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 113(4).
- [Houghton et al., 2001] Houghton, J. T., Ding, Y., Griggs, D. J., Noguer, M., Van der Linden, P. J., Dai, X., Maskell, K., and Johnson, C. A. (2001). Climate Change 2001: The Scientific Basis. *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, page 881.
- [Hurtmans et al., 2012] Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Wespes, C., Clarisse, L., Scharf, O., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., George, M., and Turquety, S. (2012). FORLI radiative transfer and retrieval code for IASI. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 113(11):1391–1408.
- [Inness et al., 2015] Inness, A., Benedetti, A., Flemming, J., Huijnen, V., Kaiser, J. W., Parrington, M., and Remy, S. (2015). The ENSO signal in atmospheric composition fields: Emission-driven versus dynamically induced changes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(15):9083–9097.
- [IPCC, 2007] IPCC (2007). Climate Change 2007 : Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change.
- [Jiang et al., 2007] Jiang, Y. B., Froidevaux, L., Lambert, A., Livesey, N. J., Read, W. G., Waters, J. W., Bojkov, B., Leblanc, T., McDermid, I. S., Godin-Beekmann, S., Filipiak, M. J., Harwood, R. S., Fuller, R. A., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Jarnot, R. F., Knosp, B. W., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Wagner, P. A., Allaart, M., Andersen, S. B., Bodeker, G., Calpini, B., Claude, H., Coetzee, G., Davies, J., De Backer, H., Dier, H., Fujiwara, M., Johnson, B., Kelder, H., Leme, N. P., König-Langlo, G., Kyro, E., Laneve, G., Fook, L. S., Merrill, J.,

- Morris, G., Newchurch, M., Oltmans, S., Parrondos, M. C., Posny, F., Schmidlin, F., Skrivankova, P., Stubi, R., Tarasick, D., Thompson, A., Thouret, V., Viatte, P., Vömel, H., von Der Gathen, P., Yela, M., and Zablocki, G. (2007). Validation of Aura Microwave Limb Sounder Ozone by ozonesonde and lidar measurements. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(24):1–20.
- [Jones et al., 1998] Jones, D. B. a., Schneider, H. R., and McElroy, M. B. (1998). Effects of the quasi-biennial oscillation on the zonally averaged transport of tracers. *Journal of Geophysical Research*, 103(D10):11235.
- [Josse, 2004] Josse, B. (2004). *Représentation des processus de transport et de lessivage pour la modélisation de la composition chimique de l’atmosphère à l’échelle planétaire*. PhD thesis, Sciences de l’Univers, de l’Environnement et de l’Espace - Toulouse III - France.
- [Josse et al., 2004] Josse, B., Simon, P., and Peuch, V. H. (2004). Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 56(4):339–356.
- [Kalnay et al., 1996] Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K. C., Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, R., Jenne, R., and Joseph, D. (1996). The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 77(3):437–471.
- [Keim et al., 2009] Keim, C., Eremenko, M., Orphal, J., Dufour, G., Flaud, J. M., Höpfner, M., Boynard, A., Clerbaux, C., Payan, S., and Coheur, P. F. (2009). Tropospheric ozone from IASI: comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes in the northern middle latitudes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:9329–9347.
- [Khattatov et al., 1999] Khattatov, B. V., Gille, J. C., Lyjak, L. V., Brasseur, G. P., Dvortsov, V. L., Roche, A. E., and Waters, J. W. (1999). Assimilation of photochemically active species and a case analysis of UARS data. *Journal of Geophysical Research*, 104(D15):18715.
- [Kim and Newchurch, 1998] Kim, J. H. and Newchurch, M. J. (1998). Biomass-burning influence on tropospheric ozone over New Guinea and South America. *Journal of Geophysical Research*, 103:1455–1461.
- [Kim et al., 2011] Kim, W., Yeh, S. W., Kim, J. H., Kug, J. S., and Kwon, M. (2011). The unique 2009-2010 El Niño event: A fast phase transition of warm pool El Niño to la Niña. *Geophysical Research Letters*, 38(15):1–5.
- [Kobayashi J., 1966] Kobayashi J., T. Y. (1966). On various methods of measuring the vertical distribution of atmospheric ozone (III) - Carbon iodine type chemical ozone sonde. *Pap. Met. Geophys.*



- [Komhyr, 1965] Komhyr, W. D. (1965). A carbon-iodine sonde sensor for atmospheric soundings. *Proc. Ozone Symp.*, page 26.
- [Komhyr, 1969] Komhyr, W. D. (1969). Electrochemical concentration cells for gas analysis. *Ann. Geophys.*, 25:203–210.
- [Kroon et al., 2008] Kroon, M., Veefkind, J. P., Sneep, M., McPeters, R. D., Bhartia, P. K., and Levelt, P. F. (2008). Comparing OMI-TOMS and OMI-DOAS total ozone column data. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 113(16):1–17.
- [Lacis et al., 1990] Lacis, A. A., Wuebbles, D. K., and Logan, J. A. (1990). Radiative forcing of climate by changes in the vertical distribution of ozone. *J. Geophys. Res.*, 95:9971–9981.
- [Lahoz et al., 2007a] Lahoz, W., Errera, Q., Swinbank, R., and Fonteyn, D. (2007a). Data assimilation of stratospheric constituents: a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(22):5745–5773.
- [Lahoz et al., 2007b] Lahoz, W., Geer, A., Bekki, S., and N (2007b). The Assimilation of Envisat data (ASSET) project. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (January 2003):1773–1796.
- [Lamsal et al., 2004] Lamsal, L. N., Weber, M., Tellmann, S., and Burrows, J. P. (2004). Ozone column classified climatology of ozone and temperature profiles based on ozonesonde and satellite data. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 109(20):1–15.
- [Lee et al., 2010] Lee, S., Shelow, D. M., Thompson, a. M., and Miller, S. K. (2010). QBO and ENSO variability in temperature and ozone from SHADOZ, 1998–2005. *Journal of Geophysical Research*, 115(D18):D18105.
- [Lefevre et al., 1994] Lefevre, F., Brasseur, G. P., Folkins, L., Smith, A. K., and Simon, P. (1994). Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations. *Journal of Geophysical Research*, 99(D4):8183–8195.
- [Levelt et al., 1996] Levelt, P. F., Allaart, M. a. F., and Kelder, H. M. (1996). On the assimilation of total-ozone satellite data. *Annales Geophysicae*, 14(11):1111.
- [Levelt et al., 1998] Levelt, P. F., Khatatov, B. V., Gille, J. C., Brasseur, G. P., Tie, X. X., and Waters, J. W. (1998). Assimilation of MLS ozone measurements in the global three-dimensional chemistry transport model ROSE. *Geophysical Research Letters*, 25(24):4493–4496.
- [Levelt et al., 2006] Levelt, P. F., van den Oord, G. H. J., Dobber, M. R., Malkki, A., Visser, H., de Vries, J., Stammes, P., Lundell, J. O. V., and Saari, H. (2006). The ozone monitoring instrument. *Ieee Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5):1093–1101.

- [Liu and Nocedal, 1989] Liu, D. C. and Nocedal, J. (1989). On the limited memory BFGS method for large scale optimization. *Mathematical Programming*, 45(1-3):503–528.
- [Liu et al., 2017] Liu, J., Rodriguez, J. M., Steenrod, S. D., Douglass, A. R., Logan, J. A., Olsen, M. A., Wargan, K., and Ziemke, J. R. (2017). Causes of interannual variability over the southern hemispheric tropospheric ozone maximum. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(5):3279–3299.
- [Liu et al., 2010] Liu, X., Bhartia, P. K., Chance, K., Froidevaux, L., Spurr, R. J. D., and Kurosu, T. P. (2010). Validation of Ozone Monitoring Instrument (OMI) ozone profiles and stratospheric ozone columns with Microwave Limb Sounder (MLS) measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9:24913–24943.
- [Livesey et al., 2008] Livesey, N. J., Filipiak, M. J., Froidevaux, L., Read, W. G., Lambert, A., Santee, M. L., Jiang, J. H., Pumphrey, H. C., Waters, J. W., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Daffer, W. H., Drouin, B. J., Fuller, R. A., Jarnot, R. F., Jiang, Y. B., Knosp, B. W., Li, Q. B., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Snyder, W. V., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Wagner, P. A., Avery, M., Browell, E. V., Cammas, J.-P., Christensen, L. E., Diskin, G. S., Gao, R.-S., Jost, H.-J., Loewenstein, M., Lopez, J. D., Nedelec, P., Osterman, G. B., Sachse, G. W., and Webster, C. R. (2008). Validation of Aura Microwave Limb Sounder O<sub>3</sub> and CO observations in the upper troposphere and lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research*, 113(D15):D15S02.
- [Livesey et al., 2017] Livesey, N. J., Read, W. G., A.Wagner, P., Froidevaux, L., Lambert, A., L.Manney, G., Valle, L. F., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Schwartz, M. J., Wang, S., Fuller, R. A., Jarnot, R. F., Knosp, B., and Martinez, E. (2017). Version 4.2x Level data quality and description document.
- [Livesey et al., 2011] Livesey, N. J., Read, W. G., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Schwartz, M. J., Wang, S., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Fuller, R. a., Jarnot, R. F., Jiang, J. H., Knosp, B. W., Stek, P. C., Wagner, P. a., and Wu, D. L. (2011). EOS MLS Version 3.3 Level 2 data quality and description document. *Technical Report, Jet Propulsion Laboratory*, pages 1–162.
- [Livesey et al., 2016] Livesey, N. J., Read, W. G., Wagner, P. A., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Millan Valle, L. F., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., and Michael J. Schwartz, Shuhui Wang, Ryan A. Fuller, Robert F. Jarnot, Brian W. Knosp, E. M. (2016). EOS MLS Version 4.2x Level 2 data quality and description document. Technical report.
- [Logan, 1999] Logan, J. (1999). An analysis of ozonesonde data for the lower stratosphere: Recommendations for testing models. *Journal of Geophysical Research*, 104(D13):16151.
- [Lorenc, 1986] Lorenc, A. C. (1986). Analysis methods for numerical weather prediction. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 112(474):1177–1194.

- [Madden and Julian, 1972] Madden, R. a. and Julian, P. R. (1972). Description of Global-Scale Circulation Cells in the Tropics with a 40–50 Day Period.
- [Madden and Julian, 1994] Madden, R. a. and Julian, P. R. (1994). Observations of the 40–50-Day Tropical Oscillation—A Review. *Monthly Weather Review*, 122:814–837.
- [Marécal et al., 2015] Marécal, V., Peuch, V. H., Andersson, C., Andersson, S., Arteta, J., Beekmann, M., Benedictow, A., Bergström, R., Bessagnet, B., Cansado, A., Chéroux, F., Colette, A., Coman, A., Curier, R. L., Van Der Gon, H. A., Drouin, A., Elbern, H., Emili, E., Engelen, R. J., Eskes, H. J., Foret, G., Friese, E., Gauss, M., Giannaros, C., Guth, J., Joly, M., Jaumouillé, E., Josse, B., Kadygrov, N., Kaiser, J. W., Krajsek, K., Kuenen, J., Kumar, U., Liora, N., Lopez, E., Malherbe, L., Martinez, I., Melas, D., Meleux, F., Menut, L., Moinat, P., Morales, T., Parmentier, J., Piacentini, A., Plu, M., Poupkou, A., Queguiner, S., Robertson, L., Rouïl, L., Schaap, M., Segers, A., Sofiev, M., Tarasson, L., Thomas, M., Timmermans, R., Valdebenito, Van Velthoven, P., Van Versendaal, R., Vira, J., and Ung, A. (2015). A regional air quality forecasting system over Europe: The MACC-II daily ensemble production. *Geoscientific Model Development*, 8(9):2777–2813.
- [Marenco et al., 1998] Marenco, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poschmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T. (1998). Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft: The MOZAIC airborne program, an overview. *Journal of Geophysical Research*, 103(D19):25631.
- [Mari et al., 2000] Mari, C., Jacob, D. J., and Bechtold, P. (2000). Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud. *Journal of Geophysical Research*, 105:22255.
- [Massart et al., 2005] Massart, S., Cariolle, D., and Peuch, V.-H. (2005). Vers une meilleure représentation de la distribution et de la variabilité de l’ozone atmosphérique par l’assimilation des données satellitaires. *Comptes Rendus Geoscience*, 337(15):1305–1310.
- [Massart et al., 2009] Massart, S., Clerbaux, C., Cariolle, D., Piacentini, A., Turquety, S., and Hadji-Lazaro, J. (2009). First steps towards the assimilation of IASI ozone data into the MOCAGE-PALM system. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14):5073–5091.
- [Massart et al., 2010] Massart, S., Pajot, B., Piacentini, A., and Pannekoucke, O. (2010). On the Merits of Using a 3D-FGAT Assimilation Scheme with an Outer Loop for Atmospheric Situations Governed by Transport. *Monthly Weather Review*, 138(12):4509–4522.
- [Massart et al., 2012] Massart, S., Piacentini, A., and Pannekoucke, O. (2012). Importance of using ensemble estimated background error covariances for the quality of atmospheric ozone analyses. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 138(665):889–905.

- [Matricardi, 2009] Matricardi, M. (2009). An assessment of the accuracy of the RTTOV fast radiative transfer model using IASI data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(2008):9491–9535.
- [Matsueda et al., 2002] Matsueda, H., Taguchi, S., Inoue, H. Y., and Ishii, M. (2002). A large impact of tropical biomass burning on CO and CO<sub>2</sub> in the upper troposphere. *Science In China Series C-Life Sciences*, 45(October):116–125.
- [McElroy et al., 1976] McElroy, M. B., Elkins, J. W., Wofsy, S. C., and Yung, Y. L. (1976). Sources and sinks for atmospheric N<sub>2</sub>O. *Reviews of Geophysics*, 14(2):143.
- [Mcpeters et al., 1997] Mcpeters, R. D., Goddard, N., Flight, S., and Corporation, H. S. T. X. (1997). A satellite-derived ozone climatology for balloonsonde estimation of total column ozone. *Journal of Geophysical Research*, 102:8875–8885.
- [McPeters et al., 2007] McPeters, R. D., Labow, G. J., and Logan, J. A. (2007). Ozone climatological profiles for satellite retrieval algorithms. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(5):1–9.
- [Michou, 2005] Michou, M. (2005). Modélisation du dépôt sec et des émissions d'espèces chimiques d'intérêt pour la qualité de l'air et pour la composition de la troposphère. *PhD thesis, Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace - Toulouse III - France*.
- [Michou and Peuch, 2002] Michou, M. and Peuch, V.-H. (2002). Surface exchanges in the MOCAGE multiscale Chemistry and Transport Model. *Water Res.*, 15:173–202.
- [Nassar et al., 2009] Nassar, R., Logan, J. A., Megretskaia, I. A., Murray, L. T., Zhang, L., and Jones, D. B. A. (2009). Analysis of tropical tropospheric ozone, carbon monoxide, and water vapor during the 2006 El Nino using TES observations and the GEOS-Chem model. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 114(17):1–23.
- [Neu et al., 2014] Neu, J. L., Flury, T., Manney, G. L., Santee, M. L., Livesey, N. J., and Worden, J. (2014). Tropospheric ozone variations governed by changes in stratospheric circulation. *Nature Geoscience*, 7(May):340–344.
- [Oetjen et al., 2016] Oetjen, H., Payne, V. H., Neu, J. L., Kulawik, S. S., Edwards, D. P., Eldering, A., Worden, H. M., and Worden, J. R. (2016). A joint data record of tropospheric ozone from Aura-TES and MetOp-IASI. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(15):10229–10239.
- [Ogawa et al., 1994] Ogawa, T., Shimoda, H., Hayashi, M., Imasu, R., Ono, A., Nishinomiya, S., and Kobayashi, H. (1994). IMG, interferometric measurement of greenhouse gases from space. *Advances in Space Research*, 14(1):25–28.
- [Olsen et al., 2016] Olsen, M. A., Wargan, K., and Pawson, S. (2016). Tropospheric column ozone response to ENSO in GEOS-5 assimilation of OMI and MLS ozone data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(11):7091–7103.

- [Oman et al., 2013] Oman, L. D., Douglass, A. R., Ziemke, J. R., Rodriguez, J. M., Waugh, D. W., and Nielsen, J. E. (2013). The ozone response to enso in aura satellite measurements and a chemistry-climate simulation. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(2):965–976.
- [Oman et al., 2011] Oman, L. D., Ziemke, J. R., Douglass, A. R., Waugh, D. W., Lang, C., Rodriguez, J. M., and Nielsen, J. E. (2011). The response of tropical tropospheric ozone to ENSO. *Geophysical Research Letters*, 38(13):2–7.
- [Onogi et al., 2007] Onogi, K., Tsutsui, J., Koide, H., Sakamoto, M., Kobayashi, S., Hatsushika, H., Matsumoto, T., Yamazaki, N., Kamahori, H., Takahashi, K., Kadokura, S., Wada, K., Kato, K., Oyama, R., Ose, T., Mannoji, N., and Taira, R. (2007). The JRA-25 Reanalysis. *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 85(3):369–432.
- [Paul et al., 1998] Paul, J., Fortuin, F., and Kelder, H. (1998). An ozone climatology based on ozonesonde and satellite measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103(D24):31709–31734.
- [Pavelin et al., 2008] Pavelin, E. G., English, S. J., and Eyre, J. R. (2008). The assimilation of cloud-affected infrared satellite radiances for numerical weather prediction. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 134(March):737–749.
- [Petzold et al., 2015] Petzold, A., Thouret, V., Gerbig, C., Zahn, A., Brenninkmeijer, C. A., Gallagher, M., Hermann, M., Pontaud, M., Ziereis, H., Boulanger, D., Marshall, J., Nédélec, P., Smit, H. G., Friess, U., Flaud, J. M., Wahner, A., Cammas, J. P., Volz-Thomas, A., Petzold, A., Volz-Thomas, A., Smit, H. G., Thomas, K., Rohs, S., Bundke, U., Neis, P., Berkes, F., Houben, N., Berg, M., Tappertzhofen, M., Blomel, T., Pätz, W., Gerbig, C., Marshall, J., Filges, A., Boschetti, F., Verma, S., Baum, S., Thouret, V., Cammas, J. P., Nédélec, P., Boulanger, D., Athier, G., Cousin, J. M., Sauvage, B., Blot, R., Clark, H., Gaudel, A., Gressent, A., Auby, A., Fontaine, A., Gautron, B., Bennouna, Y., Petetin, H., Pontaud, M., Karcher, F., Abonne, C., Dandin, P., Gallagher, M., Beswick, K., Wang, K. Y., Brenninkmeijer, C. A., Rauthe-Schöch, A., Baker, A. K., Riede, H., Gromov, S., Zimmermann, P., Thorenz, U., Scharffe, D., Koepfel, C., Slemr, F., Schuck, T. J., Umezawa, T., Ditas, J., Cheng, Y., Schneider, J., Williams, J., Zahn, A., Neumaier, M., Christner, E., Fischbeck, G., Safadi, L., Petrelli, A., Gehrlein, T., Heger, S., Dyroff, C., Weber, S., Hermann, M., Assmann, D., Rubach, F., Weigelt, A., Ziereis, H., Stratmann, G., Stock, P., Friess, U., Pent, L., Walter, D., Heue, K. P., Allouche, Y., Marizy, C., Hermira, J., Bringtown, S., Saueressig, G., Seidel, N., Huf, M., Waibel, A., Franke, H., Klaus, C., Stosius, R., Baumgardner, D., Braathen, G., Paulin, M., and Garnett, N. (2015). Global-scale atmosphere monitoring by in-service aircraft - current achievements and future prospects of the European Research Infrastructure IAGOS. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 6(1):1–24.

- [Peuch et al., 1999] Peuch, V.-H., Amodei, M., Barthet, T., Cathala, M. L., Michou, M., and Simon, P. (1999). MOCAGE. *Acte de l'Atelier de Modélisation de l'Atmosphère, Toulouse, France*, pages 33–36.
- [Philander S. G., 1989] Philander S. G. (1989). El Niño, La Nina, and the Southern Oscillation. *Academic Press*, 46:293.
- [Pisso et al., 2009] Piss0, I., Real, E., Law, K. S., Legras, B., Bousserez, N., Attié, J. L., and Schlager, H. (2009). Estimation of mixing in the troposphere from Lagrangian trace gas reconstructions during long-range pollution plume transport. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 114(19).
- [Pittman et al., 2009] Pittman, J. V., Pan, L. L., Wei, J. C., Irion, F. W., Liu, X., Maddy, E. S., Barnet, C. D., Chance, K., and Gao, R. S. (2009). Evaluation of AIRS, IASI, and OMI ozone profile retrievals in the extratropical tropopause region using in situ aircraft measurements. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 114(24):1–17.
- [Pommier et al., 2012] Pommier, M., Clerbaux, C., Law, K. S., Ancellet, G., Bernath, P., Coheur, P. F., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Nédélec, P., Paris, J. D., Ravetta, F., Ryerson, T. B., Schlager, H., and Weinheimer, A. J. (2012). Analysis of IASI tropospheric O3 data over the Arctic during POLARCAT campaigns in 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(16):7371–7389.
- [Pradier et al., 2006] Pradier, S., Attié, J.-L., Chong, M., Escobar, J., Peuch, V.-H., Lamarque, J.-F., Khattatov, B., and Edwards, D. (2006). Evaluation of 2001 springtime CO transport over West Africa using MOPITT CO measurements assimilated in a global chemistry transport model. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 58(3):163–176.
- [Quan et al., 2004] Quan, X.-W., Diaz, H. F., and Hoerling, M. P. (2004). Change of the Tropical Hadley Cell Since 1950. *The Hadley Circulation: Present, Past and Future*, pages 85–120.
- [Rabier et al., 1999] Rabier, F., Järvinen, H., Klinker, E., Mahfouf, J.-F., and Simmons, A. (1999). The ECMWF operational implementation of four dimensional variational assimilation. Part I: Experimental results with simplified physics. Shinfield Park, Reading.
- [Randel and Thompson, 2011] Randel, W. J. and Thompson, A. M. (2011). Inter-annual variability and trends in tropical ozone derived from SAGE II satellite data and SHADOZ ozonesondes. *Journal of Geophysical Research*, 116(D7):D07303.
- [Riishøjgaard, 1996] Riishøjgaard, L. (1996). On four-dimensional variational assimilation of ozone data in weather-prediction models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 122(535):1545–1571.
- [Riishøjgaard et al., 2000] Riishøjgaard, L., Štajner, I., and Lou, G.-P. (2000). The Geos Ozone Data Assimilation System. *Advances in Space Research*, 25:1063–1072.

- [Rodgers, 1976] Rodgers, C. (1976). Retrieval of Atmospheric Temperature and Composition From Remote Measurements of Thermal Radiation. *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 14:609.
- [Rodgers, 2000] Rodgers, C. (2000). Inverse Methods for Atmospheric Sounding - Theory and Practice. *World Scientific Publishing*, 2(Series on Atmospheric Oceanic and Planetary Physics).
- [Rodgers, 1990] Rodgers, C. D. (1990). Characterization and Error Analysis of Profiles Retrieved From Remote Sounding Measurements. *Journal of Geophysical Research*, 95:5587–5595.
- [Rose and Brasseur, 1989] Rose, K. and Brasseur, G. (1989). A three-dimensional model of chemically active trace species in the middle atmosphere during disturbed winter conditions. *J.G.R.*, 94(D13):16387–16403.
- [Rouil et al., 2009] Rouil, L., Honoré, C., Vautard, R., Beekman, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Dufour, A., Elichegaray, C., Flaud, J. M., Menut, L., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V. H., and Poisson, N. (2009). Prev'air: An operational forecasting and mapping system for air quality in Europe. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 90(1):73–83.
- [Safieddine et al., 2013] Safieddine, S., Clerbaux, C., George, M., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Coheur, P. F., Wespes, C., Loyola, D., Valks, P., and Hao, N. (2013). Tropospheric ozone and nitrogen dioxide measurements in urban and rural regions as seen by IASI and GOME-2. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(18):10555–10566.
- [Salby and Callaghan, 2006] Salby, M. L. and Callaghan, P. F. (2006). Influence of the Brewer-Dobson circulation on stratosphere-troposphere exchange. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 111(21):1–9.
- [Saunders et al., 2013] Saunders, R., Hocking, J., Rundle, D., Rayer, P., Matricardi, M., Geer, A., Lupu, C., Brunel, P., and Vidot, J. (2013). Rttov-11 Science and Validation Report. *EUMETSAT Satellite Application Facility on Numerical Weather Prediction*, NWPSAF-MO-:1–31.
- [Saunders et al., 1999a] Saunders, R., Matricardi, M., and Brunel, P. (1999a). A fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations - RTTOV-5. *ECMWF - Technical Memorandum*, (282).
- [Saunders et al., 1999b] Saunders, R., Matricardi, M., and Brunel, P. (1999b). An improved fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 125:1407–1425.
- [Sauvage et al., 2007] Sauvage, B., Martin, R. V., van Donkelaar, A., and Ziemke, J. R. (2007). Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the South Atlantic maximum. *Journal of Geophysical Research*, 112(D11):D11309.

- [Scannell et al., 2012] Scannell, C., Hurtmans, D., Boynard, A., Hadji-Lazaro, J., George, M., Delcloo, A., Tuinder, O., Coheur, P.-F., and Clerbaux, C. (2012). Antarctic ozone hole as observed by IASI/MetOp for 2008–2010. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(1):123–139.
- [Schoenbein, 1840] Schoenbein, C. F. (1840). On the Odour Accompanying Electricity, and on the Probability of Its Dependence on the Presence of a New Substrate. *Philosophical Magazine*, 17:293–294.
- [Schubert et al., 1993] Schubert, S. D., Rood, R. B., and Pfaendtner, J. (1993). An Assimilated Dataset for Earth Science Applications. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 74(12):2331–2342.
- [Schwartz et al., 2015] Schwartz, M., Froidevaux, L., Livesey, N., and Read, W. (2015). MLS/Aura Level 2 Ozone (O<sub>3</sub>) Mixing Ratio V004. *Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center (GES DISC)*.
- [Semane, 2007] Semane, N. (2007). An observed and analysed stratospheric ozone intrusion over the high Canadian Arctic UTLS region during the summer of 2003. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 133(October):171–178.
- [Shapiro, 1980] Shapiro, M. a. (1980). Turbulent Mixing within Tropopause Folds as a Mechanism for the Exchange of Chemical Constituents between the Stratosphere and Troposphere.
- [Sič et al., 2015] Sič, B., El Amraoui, L., Marécal, V., Josse, B., Arteta, J., Guth, J., Joly, M., and Hamer, P. D. (2015). Modelling of primary aerosols in the chemical transport model MOCAGE: Development and evaluation of aerosol physical parameterizations. *Geoscientific Model Development*, 8(2):381–408.
- [Sič et al., 2016] Sič, B., El Amraoui, L., Piacentini, A., Marécal, V., Emili, E., Cariolle, D., Prather, M., and Attie, J. L. (2016). Aerosol data assimilation in the chemical transport model MOCAGE during the TRAQA/ChArMEx campaign: Aerosol optical depth. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(11):5535–5554.
- [Sinha et al., 2004] Sinha, P., Jaeglé, L., Hobbs, P. V., and Liang, Q. (2004). Transport of biomass burning emissions from southern Africa. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 109(20):1–15.
- [Smit et al., 2007] Smit, H. G. J., Straeter, W., Johnson, B. J., Oltmans, S. J., Davies, J., Tarasick, D. W., Hoegger, B., Stubi, R., Schmidlin, F. J., Northam, T., Thompson, A. M., Witte, J. C., Boyd, I., and Posny, F. (2007). Assessment of the performance of ECC-ozonesondes under quasi-flight conditions in the environmental simulation chamber: Insights from the Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE). *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(19):1–18.
- [Solomon et al., 2005] Solomon, S., Thompson, D. W. J., Portmann, R. W., Oltmans, S. J., and Thompson, a. M. (2005). On the distribution and variability of



- ozone in the tropical upper troposphere: Implications for tropical deep convection and chemical-dynamical coupling. *Geophysical Research Letters*, 32(23):L23813.
- [Stajner et al., 2001] Stajner, I., Riishojgaard, L. P., and Rood, R. B. (2001). The GEOS ozone data assimilation system: Specification of error statistics. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127(573):1069–1094.
- [Steinbrecht et al., 1998] Steinbrecht, W., Claude, H., Köhler, U., and Hoinka, K. P. (1998). Correlations between tropopause height and total ozone: Implications for long-term changes. *Journal of Geophysical Research*, 103(D15):19183.
- [Stevenson et al., 2005] Stevenson, D., Doherty, R., Sanderson, M., Johnson, C., and Derwent, R. G. (2005). Impacts of climate change and variability on tropospheric ozone and its precursors. *Faraday Discuss.*
- [Stiller et al., 2000] Stiller, G. P., (Karlsruhe), F., and Karlsruhe, F. (2000). The Karlsruhe Optimized and Precise Radiative Transfer Algorithm (KOPRA).
- [Stockwell et al., 1997] Stockwell, W. R., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S. (1997). A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research*, 102:25847–25879.
- [Streets et al., 2003] Streets, D. G., Yarber, K. F., Woo, J.-H., and Carmichael, G. R. (2003). Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. *Global Biogeochemical Cycles*, 17(4):1099.
- [Struthers et al., 2002] Struthers, H., Brugge, R., Lahoz, W. A., O'Neill, A., and Swinbank, R. (2002). Assimilation of ozone profiles and total column measurements into a global general circulation model. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 107(20):1–14.
- [Sudo and Takahashi, 2001a] Sudo, K. and Takahashi, M. (2001a). Simulation of tropospheric ozone changes during 1997-1998 El Nino: Meteorological impact on tropospheric photochemistry. *Geophysical Research Letters*, 28(21):4091–4094.
- [Sudo and Takahashi, 2001b] Sudo, K. and Takahashi, M. (2001b). Simulation of tropospheric ozone changes during 1997-1998 El Nino: Meteorological impact on tropospheric photochemistry. *Geophysical Research Letters*, 28(21):4091–4094.
- [Talagrand and Courtier, 1987] Talagrand, O. and Courtier, P. (1987). Variational assimilation of meteorological observations with the adjoint vorticity equation. Part 1: Theory. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 113:1311–1328.
- [Teyssède et al., 2007] Teyssède, H., Michou, M., Clark, H. L., Josse, B., Karcher, F., Olivié, D., Peuch, V.-H., Saint-Martin, D., Cariolle, D., Attié, J.-L., Nédélec, P., Ricaud, P., Thouret, V., van der A, R. J., Volz-Thomas, A., and Chéroux, F. (2007). A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(22):5815–5860.

- [Thompson et al., 2003] Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogaawa, T., Johnson, B. J., Vomel, H., and Labow, G. (2003). Southern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 1. Comparaison with Total Ozone Mapping Spectrometer and ground-based measurements. *Journal of Geophysical Research*, 108(D2):8241.
- [Thompson et al., 2008] Thompson, A. M., Yorks, J. E., Miller, S. K., Witte, J. C., Dougherty, K. M., Morris, G. A., Baumgardner, D., Ladino, L., and Rappenglueck, B. (2008). Tropospheric ozone sources and wave activity over Mexico City and Houston during MILAGRO/Intercontinental Transport Experiment (INTEX-B) Ozonesonde Network Study, 2006 (IONS-06). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8:5979–6007.
- [Thouret et al., 1998] Thouret, V., Marenco, A., Logan, J. A., Nédélec, P., and Grouhel, C. (1998). Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103(D19):25695–25720.
- [Tiedtke, 1989] Tiedtke, M. (1989). A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models.
- [Tocquer et al., 2015] Tocquer, F., Barret, B., Mari, C., Flochmoën, E. L. E., Cammas, J. P., and Sauvage, B. (2015). An upper tropospheric ‘ozone river’ from Africa to India during the 2008 Asian post-monsoon season. *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology*, 67(1).
- [Tohir et al., 2015] Tohir, A. M., Bencherif, H., Sivakumar, V., El Amraoui, L., Portafaix, T., and Mbatha, N. (2015). Comparison of total column ozone obtained by the IASI-MetOp satellite with ground-based and OMI satellite observations in the southern tropics and subtropics. *Annales Geophysicae*, 33(9):1135–1146.
- [Trenberth, 1997] Trenberth, K. E. (1997). The Definition of El Nino. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 78(12):2771–2777.
- [Turquety, 2002] Turquety, S. (2002). First satellite ozone distributions retrieved from nadir high-resolution infrared spectra. *Geophysical Research Letters*, 29(24):1995–1998.
- [Uppala et al., 2005] Uppala, S. M., Kållberg, P. W., Simmons, A. J., Andrae, U., da Costa Bechtold, V., Fiorino, M., Gibson, J. K., Haseler, J., Hernandez, A., Kelly, G. A., Li, X., Onogi, K., Saarinen, S., Sokka, N., Allan, R. P., Andersson, E., Arpe, K., Balmaseda, M. A., Beljaars, A. C., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Caires, S., Chevallier, F., Dethof, A., Dragosavac, M., Fisher, M., Fuentes, M., Hagemann, S., Hólm, E., Hoskins, B. J., Isaksen, L., Janssen, P. A., Jenne, R., McNally, A. P., Mahfouf, J. F., Morcrette, J. J., Rayner, N. A., Saunders, R. W., Simon, P., Sterl, A., Trenberth, K. E., Untch, A., Vasiljevic, D., Viterbo, P., and Woollen, J. (2005). The ERA-40 re-analysis. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(612):2961–3012.

- [Walker and Bliss, 1932] Walker, G. T. and Bliss, E. W. (1932). World Weather V. *Memoirs of the Royal Meteorological Society*, 4(No. 36):53–84.
- [Wang et al., 1980] Wang, W., Pinto, J. P., and Yung, Y. L. (1980). Greenhouse effects due to man-made perturbations of trace gases. *Journal of Atmospheric Science*, 97:333–338.
- [Wang et al., 2014] Wang, X. L., Rui, H. L., and Leetmaa, A. (2014). The Dynamics of ENSO Anomaly as Revealed in Ensemble Climate Simulations-Impact of Mean Stationary Wave. *Advances in Atmospheric Sciences*, 13(4):425–444.
- [Waters et al., 2006] Waters, J. W., Froidevaux, L., Harwood, R. S., Jarnot, R. F., Pickett, H. M., Read, W. G., Siegel, P. H., Cofield, R. E., Filipiak, M. J., Flower, D. A., Holden, J. R., Lau, G. K., Livesey, N. J., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Wu, D. L., Cuddy, D. T., Lay, R. R., Loo, M. S., Perun, V. S., Schwartz, M. J., Stek, P. C., Thurstans, R. P., Boyles, M. A., Chandra, K. M., Chavez, M. C., Chen, G. S., Chudasama, B. V., Dodge, R., Fuller, R. A., Girard, M. A., Jiang, J. H., Jiang, Y., Knosp, B. W., Labelle, R. C., Lam, J. C., Lee, K. A., Miller, D., Oswald, J. E., Patel, N. C., Pukala, D. M., Quintero, O., Scaff, D. M., Van Snyder, W., Tope, M. C., Wagner, P. A., and Walch, M. J. (2006). The Earth Observing System Microwave Limb Sounder (EOS MLS) on the aura satellite. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 44(5):1075–1092.
- [Weaver and Courtier, 2001] Weaver, A. and Courtier, P. (2001). Correlation modelling on the sphere using a generalized diffusion equation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127(575):1815–1846.
- [Weaver and Mirouze, 2013] Weaver, A. T. and Mirouze, I. (2013). On the diffusion equation and its application to isotropic and anisotropic correlation modelling in variational assimilation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 139(670):242–260.
- [Webster, 1983] Webster, P. J. (1983). The large-scale structure of the tropical atmosphere. *Large Scale Dynamical Processes in the Atmosphere*.
- [Wellemeyer et al., 1997] Wellemeyer, C. G., Taylor, S. L., Seftor, C. J., McPeters, R. D., and Bhartia, P. K. (1997). A correction for total ozone mapping spectrometer profile shape errors at high latitude. *Journal of Geophysical Research*, 102(D7):9029.
- [Wesely, 1989] Wesely, M. L. (1989). Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmospheric Environment*, 23:1293–1304.
- [Wespes et al., 2012] Wespes, C., Emmons, L., Edwards, D. P., Hannigan, J., Hurtmans, D., Sauniois, M., Coheur, P. F., Clerbaux, C., Coffey, M. T., Batchelor, R. L., Lindenmaier, R., Strong, K., Weinheimer, A. J., Nowak, J. B., Ryerson, T. B., Crounse, J. D., and Wennberg, P. O. (2012). Analysis of ozone and nitric

- acid in spring and summer Arctic pollution using aircraft, ground-based, satellite observations and MOZART-4 model: Source attribution and partitioning. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(1):237–259.
- [Wespes et al., 2009] Wespes, C., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Santee, M. L., Martin, R. V., and Coheur, P. F. (2009). Global distributions of nitric acid from IASI/MetOP measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(20):7949–7962.
- [Wespes et al., 2016] Wespes, C., Hurtmans, D., K Emmons, L., Safieddine, S., Clerbaux, C., Edwards, D. P., and Coheur, P. F. (2016). Ozone variability in the troposphere and the stratosphere from the first 6 years of IASI observations (2008–2013). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(9):5721–5743.
- [Williamson and Rasch, 1989] Williamson, D. L. and Rasch, P. J. (1989). Two-dimensional semi-lagrangian transport with shape-preserving interpolation. *Mon. Wea. Rev.*, 117:102–129.
- [WMO, 1986] WMO (1986). Atmospheric Ozone 1985.
- [Yendrek et al., 2015] Yendrek, C. R., Koester, R. P., and Ainsworth, E. A. (2015). A comparative analysis of transcriptomic, biochemical, and physiological responses to elevated ozone identifies species-specific mechanisms of resilience in legume crops. *Journal of Experimental Botany*, 66(22):7101–7112.
- [Zeng and Pyle, 2005] Zeng, G. and Pyle, J. A. (2005). Influence of El Nino Southern Oscillation on stratosphere/ troposphere exchange and the global tropospheric ozone budget. *Geophysical Research Letters*, 32(1):1–4.
- [Ziemke et al., 1998] Ziemke, J. R., Chandra, S., and Bhartia, P. K. (1998). Two new methods for deriving tropospheric column ozone from TOMS measurements: Assimilated UARS MLS/HALOE and convective-cloud differential techniques. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103(D17):22115–22127.
- [Ziemke et al., 2006] Ziemke, J. R., Chandra, S., Duncan, B. N., Froidevaux, L., Bhartia, P. K., Levelt, P. F., and Waters, J. W. (2006). Tropospheric ozone determined from Aura OMI and MLS: Evaluation of measurements and comparison with the Global Modeling Initiative’s Chemical Transport Model. *Journal of Geophysical Research*, 111(D19):D19303.
- [Ziemke et al., 2011] Ziemke, J. R., Chandra, S., Labow, G. J., Bhartia, P. K., Froidevaux, L., and Witte, J. C. (2011). A global climatology of tropospheric and stratospheric ozone derived from Aura OMI and MLS measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(17):9237–9251.
- [Ziemke et al., 2010] Ziemke, J. R., Chandra, S., Oman, L. D., Bhartia, P. K., Sciencès, E., and Space, G. (2010). A new ENSO index derived from satellite measurements of column ozone. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10:3711–3721.

- [Ziemke et al., 2015] Ziemke, J. R., Douglass, a. R., Oman, L. D., Strahan, S. E., and Duncan, B. N. (2015). Tropospheric ozone variability in the tropics from ENSO to MJO and shorter timescales. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(14):8037–8049.
- [Ziemke et al., 2014] Ziemke, J. R., Olsen, M. A., Witte, J. C., Douglass, A. R., Strahan, S. E., Wargan, K., Liu, X., Schoeberl, M. R., Yang, K., Kaplan, T. B., Pawson, S., Duncan, B. N., Newman, P. A., Hartia, P. K., and Heney, M. K. (2014). Assessment and applications of NASA ozone data products derived from Aura OMI/MLS satellite measurements in context of the GMI chemical transport model. *Geophysical Research Letters*, pages 1–14.
- [Ziemke, J. R. and Chandra, 2003] Ziemke, J. R. and Chandra, S. (2003). La Nina and El Nino—induced variabilities of ozone in the tropical lower atmosphere during 1970–2001. *Geophysical Research Letters*, 30(3):1142.



# ANNEXES

# Appendix A

## L'équation du transfert radiatif

En sélectionnant délibérément différentes fréquences ou canaux des instruments spatiaux, cela permet de fournir des informations sur des variables géophysiques spécifiques dans différentes régions de l'atmosphère.

### 1. Equations en condition de ciel clair

Dans le cas d'un milieu à la fois absorbant et émissif, où les nuages sont négligés, le terme de diffusion du rayonnement  $k_d J$  (ce qui est vrai dans l'InfraRouge) n'est alors pas pris en compte. Selon la loi de Kirchoff, dans le cas d'un milieu absorbant et émissif :

$$k_a = k_d = K \quad (\text{A.1})$$

signifiant qu'un corps ne peut émettre plus de rayonnement qu'un corps noir à la même température. L'équation du transfert radiatif se simplifie alors en :

$$\frac{dL}{ds} = -k_a L - k_d L + k_a B = K(B - L) \quad (\text{A.2})$$

Mettons nous en équilibre thermodynamique local (milieu possédant un gradient de température, ce qui est le cas de la troposphère et de la stratosphère), prenons une couche d'épaisseur  $ds$  (le chemin optique) et multiplions cette équation par  $\exp(\int_0^s K ds')$ . Il advient :

$$\frac{dL}{ds} \exp\left(\int K ds'\right) = K(B(T) \exp\left(\int K ds'\right) - L \exp\left(\int K ds'\right)) \quad (\text{A.3})$$

or si nous écrivons :

$$\frac{1}{K} \frac{d}{ds} (L \exp\left(\int K ds'\right)) = \frac{1}{K} \left( \frac{dL}{ds} \exp\left(\int K ds'\right) + L \frac{d}{ds} \exp\left(\int K ds'\right) \right) \quad (\text{A.4})$$

$$= \frac{1}{K} \left( \frac{dL}{ds} \exp\left(\int K ds'\right) + L \exp\left(\int K ds'\right) \frac{d}{ds} \int K ds' \right) \quad (\text{A.5})$$

$$= \frac{1}{K} \left( \frac{dL}{ds} \exp\left(\int K ds'\right) + L \exp\left(\int K ds'\right) K \right) \quad (\text{A.6})$$

$$= \left( \frac{1}{K} \frac{dL}{ds} + L \right) \exp\left(\int K ds'\right) \quad (\text{A.7})$$



alors l'équation A.3 s'écrit :

$$\frac{d}{ds}(L \exp(\int_0^s K ds')) = KB(T) \exp(\int_0^s K ds') \quad (\text{A.8})$$

en intégrant cette équation sur le domaine situé entre  $s=0$  à la hauteur  $s$ , le premier terme s'écrit :

$$\int_0^s \frac{d}{ds}(L \exp(\int_0^s K ds')) ds = [L \exp(\int_0^s K ds')]_0^s \quad (\text{A.9})$$

$$= L(s) \exp(\int_0^s K ds') - L(0) \exp(\int_0^0 K ds') \quad (\text{A.10})$$

or  $\exp(\int_0^0 K ds') = e^0 = 1$ , alors :

$$L(s) \exp(\int_0^s K ds') - L(0) = \int_0^s KB(T(z)) (\exp(\int_0^z K ds')) dz \quad (\text{A.11})$$

pour plus de clarté, un changement des index a été effectué.

Le terme  $L(0)$  correspond à l'émission du sol qui dépend seulement de la température de surface. En multipliant l'équation par  $\exp(-\int_0^s K ds')$ , elle devient :

$$L(s) = L(0) \exp(-\int_0^s K ds') + \int_0^s KB(T(z)) (\exp(\int_0^z K ds') - \exp(\int_0^s K ds')) dz \quad (\text{A.12})$$

$$= L(0) \exp(-\int_0^s K ds') + \int_0^s KB(T(z)) (\exp(-\int_z^s K ds')) dz \quad (\text{A.13})$$

Au sommet de l'atmosphère ( $s = \infty$ ), elle devient :

$$L(\infty) = L(0) \exp(-\int_0^\infty K ds') + \int_0^\infty KB(T(z)) \exp(-\int_z^\infty K ds') dz \quad (\text{A.14})$$

Introduisant le terme de transmission  $\tau$  qui traduit la décroissance exponentielle due à l'extinction de la luminance initiale entre les hauteur  $s$  et  $\infty$  :

$$\tau(s) = \exp(-\int_s^\infty K ds') \quad (\text{A.15})$$

$$\frac{d\tau(s)}{ds} = \tau(s) \frac{d}{ds} \int_s^\infty K ds' \quad (\text{A.16})$$

$$\frac{d\tau(s)}{ds} = \tau(s) \lim_{(\delta s \rightarrow 0)} \frac{1}{\delta s} (\int_s^{s+\delta s} K ds' - \int_s^\infty K ds') \quad (\text{A.17})$$

$$\frac{d\tau(s)}{ds} = \tau(s) \lim_{(\delta s \rightarrow 0)} \frac{1}{\delta s} (\int_s^{s+\delta s} K ds') \quad (\text{A.18})$$

$$\frac{d\tau(s)}{ds} = \tau(s) K(s) \quad (\text{A.19})$$

en reprenant les équations A.19 et A.14 :

$$L(\infty) = L(0) \tau(0) + \int_0^\infty K(z) B(T(z)) \tau(z) dz \quad (\text{A.20})$$

$$L(\infty) = L(0) \tau(0) + \int_0^\infty B(T(z)) \frac{d\tau(z)}{dz} dz \quad (\text{A.21})$$

On obtient alors l'équation du transfert radiatif en fonction de la transmittance. Le premier terme de droite correspond à l'émission de surface et le deuxième terme à l'émission thermique atmosphérique.

## 2. Aucune contribution atmosphérique

L'émission thermique, ainsi que la réflexion par la surface se négligent, de même que la contribution de la pluie et des nuages. Il existe très peu d'interaction avec l'atmosphère. La principale contribution des radiances mesurées s'écrit alors :

$$L(\nu) = B[\nu, T_{surf}]\epsilon(u, v) \quad (\text{A.22})$$

Il s'agit de l'émission de surface où  $T_{surf}$  est la température de surface et  $\epsilon$  l'émissivité de surface. Ces canaux sont particulièrement utilisés pour avoir, d'une part des informations sur la température de surface et sur les éléments influençant l'émissivité de surface tel que le vent et la végétation, et d'autre part des informations sur la pluie et les nuages.

# Appendix B

## Niveaux de données IASI

Les données satellitaires sont classées par niveaux de catégories selon les traitements qui ont été effectués.

- **Niveaux 0**

Le rayonnement issu de l'interféromètre du sondeur IASI est divisé en trois bandes spectrales. La conversion des photons en un signal électrique se fait par des détecteurs qui diffèrent suivant la bande spectrale en question. Un Convertisseur Analogique Numérique (CAN) est utilisé pour aboutir à des interférogrammes numérisés qui sont ensuite transformés en des produits pouvant être distribués aux utilisateurs par des traitements numériques.

Les données IASI (interférogrammes numérisés) à ce niveau sont encore traitées à bord du satellite MétOp-A. Il s'agit de données brutes où les spectres sont transformés après la transformée de Fourier inverse en spectres calibrés. La calibration permet de masquer de fausses mesures. Après avoir été enregistrés tout au long de l'orbite, ces spectres calibrés (figure 3.10) sont ensuite codés et envoyés comme "données au niveau 0" au centre de l'EUMETSAT, à Darmstadt en Allemagne, ainsi qu'au IASI TEC (Centre d'Expertise Technique de IASI) situé au CNES à Toulouse.

- **Niveau 1a**

Des corrections appropriées sur les spectres de niveau 0 sont appliquées. Étant donné que la source de référence interne sur le corps noir n'est pas explicite, une fonction d'émissivité du corps noir est appliquée. Pour les niveaux 1a, deux autres instruments à bord de MétOp-A sont utilisés : L'imageur intégré de IASI (ISS) et le Radiomètre avancé à très haute résolution (AVHRR, Advanced Very High Resolution Radiometer). L'AVHRR est un imageur multispectral avec des canaux dans le visible et dans l'infrarouge. Il fournit les caractéristiques des nuages (hauteur du sommet, émissivité, ..), la température des mers et la couverture de glace, de neige et de végétation. Sa résolution spatiale est d'environ 1 km. Les radiances de l'AVHRR sont analysées par l'ISS dans les mêmes champs de vue que IASI afin d'obtenir la position des nuages. De plus, l'utilisation de ces deux instruments permet la géo-localisation de IASI.

- **Niveau 1b**

Les spectres du niveau 1a sont rééchantillonnés avec une longueur d'onde constante ( $0.25 \text{ cm}^{-1}$ ). Puis les spectres sont interpolés sur une nouvelle grille spectrale.

- **Niveau 1c**

Les spectres du niveau 1b de IASI sont apodisés en utilisant la fonction d'apodisation estimée ( $0.5 \text{ cm}^{-1}$ ) afin que leur fonction de réponse spectrale soit unique sur tout le spectre. Ces données sont ensuite utilisées pour calculer les niveaux 2 de IASI qui fournissent les profils et les colonnes d'ozone [EU-METSAT, 2014].

## Appendix C

# Longueur de corrélation verticale d'erreur d'ébauche variable sur la verticale.

Pour l'analyse MLS-a, une longueur de corrélation verticale dans la matrice de corrélation d'erreur d'ébauche a été testée avec des valeurs variant pour la stratosphère, la troposphère et le niveau de tropopause dont sa hauteur dépend de la latitude.

La figure C.1 montre une validation par rapport aux sondes de l'analyse MLS-a et du Modèle direct pour le globe et les moyennes latitudes de l'hémisphère Sud et Nord suivant les valeurs de la longueur de corrélation utilisées.

Les valeurs en points de grille pour la longueur de corrélation variable ( $L_{var}$ ) sont de 2 dans la stratosphère et dans la troposphère, et de 0 à la tropopause. Un palier égal à 1 point de grille est utilisé autour de la tropopause afin de ne pas introduire une chute trop abrupte de la longueur de corrélation autour de la tropopause.

Comme exprimé dans la section 5.2.2, en utilisant une longueur de corrélation constante sur la verticale de valeur 1 point de grille, un biais apparaît avec l'analyse MLS-a d'environ 20 % à 40 % autour de 250 hPa pour les trois bandes latitudinales. Avec une longueur de corrélation nulle ( $L=0$ ) sur la verticale, ce biais est réduit avec des valeurs inférieures à 5 %. En utilisant la longueur de corrélation  $L_{var}$ , ce biais est légèrement plus important dans les moyennes latitudes que lorsque  $L=0$ . De plus, à certains autres niveaux d'altitude (pressions par exemple autour de 500 hPa, 100 hPa), les biais semblent plus importants avec  $L_{var}$  qu'avec  $L=0$ . Bien que l'utilisation d'une corrélation variable sur la verticale nécessite d'être plus étudiée, en particulier sur les valeurs en points de grille utilisées ainsi que le niveau de la tropopause associé à chaque latitude, la longueur de corrélation nulle sur la verticale semble tout aussi satisfaisante que la  $L_{var}$ .

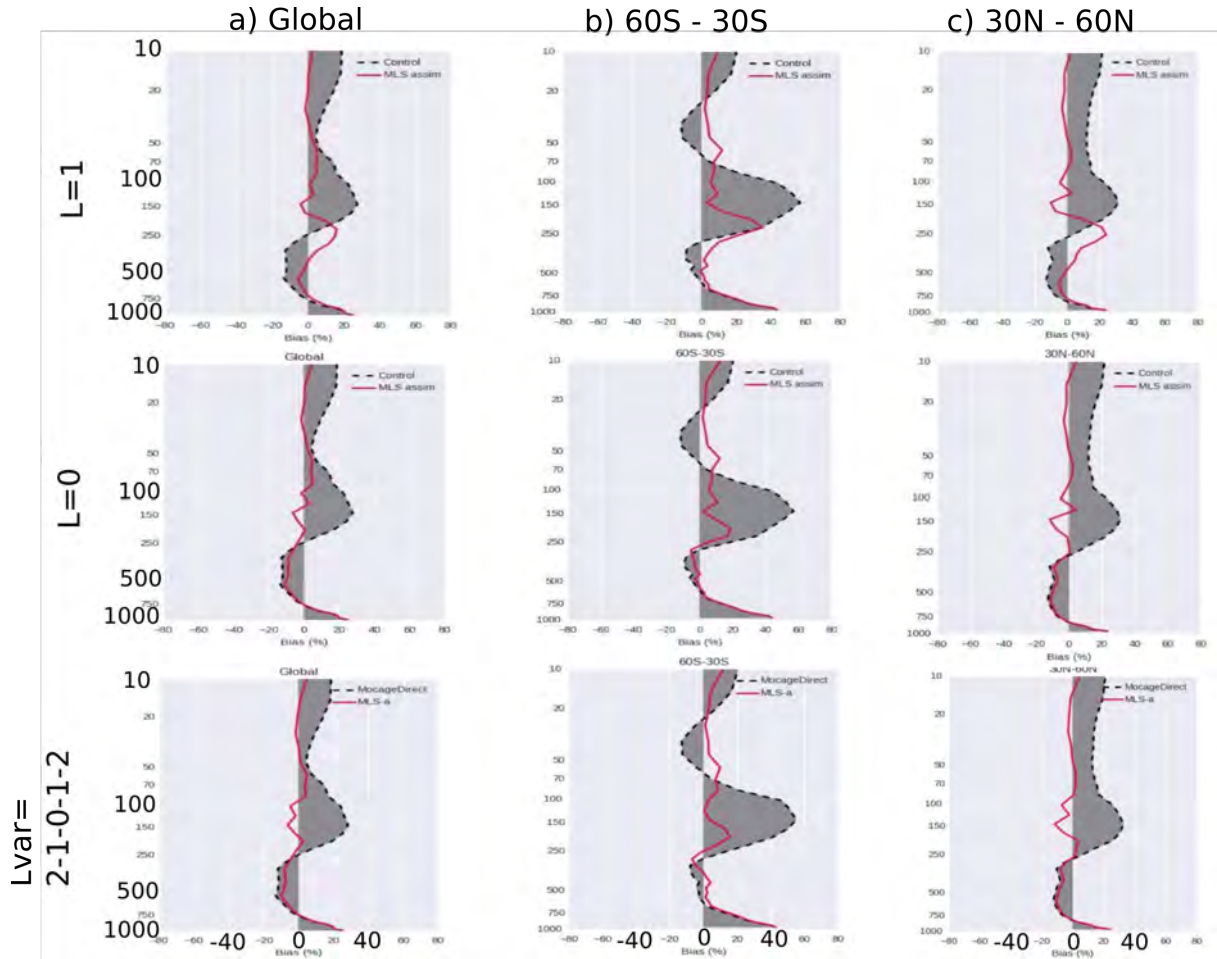


Figure C.1: Biais (en %) pour MLS-a (en rouge) et le Modèle direct (en noir) contre les profils de sondes pour la période comprise entre le 1er novembre 2008 et le 31 décembre 2008. De gauche à droite, se trouve les validations pour le globe (a), les moyennes latitudes de l'hémisphère Sud (b) et de l'hémisphère Nord (c). De haut en bas, se trouve les courbes associées au longueur de corrélation avec pour valeur  $L=1$ ,  $L=0$  et  $L$  variant de 2 (dans la stratosphère et la tropopause) à 0 (à la tropopause) avec un palier intermédiaire d'une valeur  $L=1$  autour de la tropopause. L'axe des ordonnées correspond aux pressions exprimées en hPa.

## Appendix D

### Validation concernant la variabilité d'ozone lors d'un évènement ENSO : comparaison avec l'analyse MLS-a

La figure D.1 représente les moyennes mensuelles de septembre 2009 et février 2010 pour les données OMI-MLS, l'analyse MLS-a et les deux versions de restitutions REF et DYN.

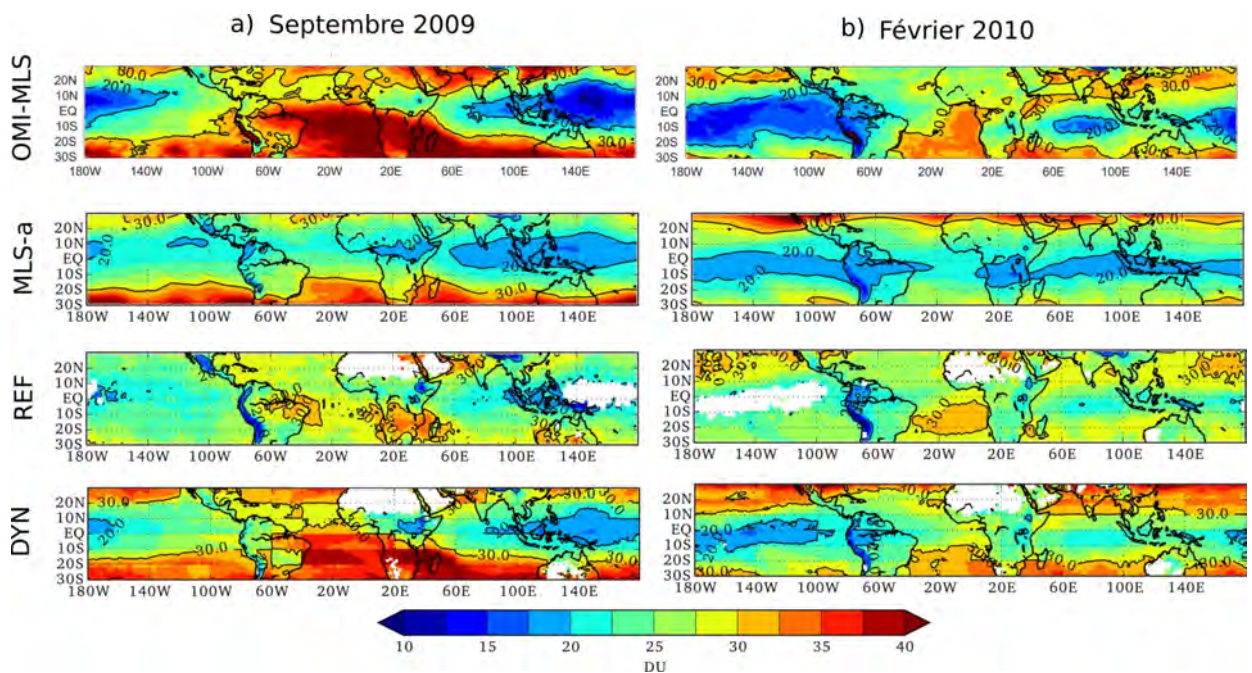


Figure D.1: Bande latitudinale entre 30° S - 30° N de la TCO (en DU) moyennée pour septembre 2009 (a) et février 2010 (b) avec de haut en bas : les données OMI-MLS, l'analyse MLS-a, la version REF, et la version DYN. Les colonnes troposphériques sont identiques entre toutes les données comparées.

Les versions REF et DYN ayant déjà été comparées aux données OMI-MLS dans

la section 7.5, la comparaison avec l'analyse MLS-a sera particulièrement commentée dans cette annexe.

L'analyse MLS-a reproduit la même répartition de TCO que les données OMI-MLS sur les régions IIO et POC, aussi bien durant les conditions normales de circulation de Walker (figure D.1a) que durant El Niño en février 2010 (figure D.1b). Cependant les minima de TCO présents au niveau des nuages convectifs sont plus faibles avec l'analyse MLS-a (environ 17 - 20 DU) qu'avec les données OMI-MLS (environ 10 DU).

Bien que la variabilité saisonnière soit marquée pour les tropiques avec MLS-a, elle ne représente pas celle observée dans les autres latitudes avec OMI-MLS. En particulier, les maxima de TCO présent sur l'océan Atlantique et l'océan Indien avec OMI-MLS ne s'observent pas avec MLS-a.

Pour conclure, le signal de l'ENSO visible avec MLS-a a donc été transmis dans le calcul des profils a-priori et des matrices de covariances associées de la version DYN. La version DYN a donc une meilleure représentation de la variabilité saisonnière de la TCO à l'équateur lors de conditions normales et lors de l'ENSO grâce à l'apport d'information de MLS-a.





---

**AUTHOR :** Hélène PEIRO

**TITLE :** Satellites data assimilation of the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) in a chemistry transport model for ozone reanalysis at global scale

**ADVISORS :** Daniel CARIOLLE et Emanuele EMILI

---

**ABSTRACT**

Human activity produces gases impacting the climate and the air quality with important economic and social consequences. Tropospheric ozone ( $O_3$ ) is created by chemical reactions from primary pollutants as nitrogen oxides.  $O_3$  is the third most important greenhouse gas after carbon dioxide and methane. It is one of the most important pollutants due to its oxidant effects on biological tissue.

Several sensors on board satellites measure ozone concentration in the Ultraviolet, visible, or in the Earth infrared radiance. The French national center for space studies CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) has developed the infrared sounding IASI on board polar meteorological satellites METOP. IASI, in orbit for several years, has allowed to estimate concentration of atmospheric gases, particularly  $O_3$ , with a spatio-temporal coverage never reached so far. Every day, IASI measures infrared spectrum of the atmosphere between 650 to 2700 nm with an horizontal resolution of 12 km, giving tens of Gigaoctet per day of geolocated data. These observations form a part of an ideal set of data for the Chemistry Transport Model (CTM). CTM are used to analyze and predict air quality and can take into account satellite data according to a mathematical procedure called 'data assimilation'. This technic allows to fill gaps in the satellite information (for instance due to clouds or during night for the UV-visible sensor) and to obtain 3D global fields of chemical species concentration on an hourly basis. Therefore, it is important to develop accurate and efficient algorithms to assimilate IASI data in the CTM's. To this end, the UMR/CECI (CERFACS) develops in collaboration with the CNRM/Météo-France an assimilation tool (named VALENTINA) to the CTM MOCAGE that has applications on global and regional scales for climate or air quality study. The CTM MOCAGE is part of the European Copernicus project on the atmospheric composition (CAMS). In addition, the UMR/CECI collaborates with the Laboratoire d'Aérodynamique that has developed for several years the SOFRID algorithm for the vertical profiles retrieval of IASI ozone data based on the radiative transfer code RTTOV.

The study of this PhD includes the tridimensional production of tropospheric ozone analysis with data assimilation (MLS, IASI) in the CTM MOCAGE, and on the ozone variability. Hence, we demonstrate the analysis ability to reproduce tropospheric ozone in response to ENSO, by bringing new informations on the vertical structure of associated anomalies. The PhD also focuses on the study of biases between analyses and independent ozone soundings. One of the main reasons could be due to the use of the climatological a-priori and matrix error covariance associated, strongly biased (particularly around the tropopause) in the retrieval method of IASI ozone data. Therefore, the second part of the PhD has consisted implementation of a method that generates accurate a-priori to improve retrieved ozone profiles. As a conclusion, this PhD brings a significant progress towards the improvement of tropospheric ozone products from IASI instrument, that should contribute to the long-term monitoring of tropospheric ozone thanks to the operational nature of METOP satellites.

---

**KEY WORDS :** atmospheric chemistry, ozone, IASI sensor, remote sensing, variational data assimilation, data retrieval.